



CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA A UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

OTIMIZAÇÃO DO SISTEMA DE ALVO INTERNO DO CÍCLOTRON CV-28 DO IPEN-CNEN/SP

SUMAIR GOUVEIA DE ARAUJO

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau
de Mestre em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear

Orientador:
Dr. Valdir Sciani

São Paulo
1996

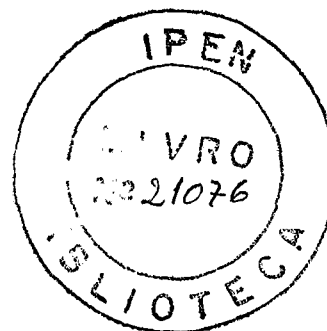
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

OTIMIZAÇÃO DO SISTEMA DE ALVO INTERNO DO CÍCLOTRON CV-28 DO
IPEN CNEN/SP

SUMAIR GOUVEIA DE ARAUJO

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do grau
de "Mestre em Ciências" na Área de
Tecnologia Nuclear.

Orientador: Dr. Valdir Sciani



SÃO PAULO

1996

Aos meus pais, Averço e Iria
Aos meus irmãos
Ao meu marido, Antonio Carlos
Aos meus filhos, Carlos e Jéssica

AGRADECIMENTOS

- A Deus, sobre todas as coisas.
- Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade da realização deste trabalho.
- Ao Dr. Valdir Sciani, meu orientador, pelo incentivo, pelos conselhos e pela dedicação, em todos os momentos. A você, muito obrigada.
- À toda equipe do ciclotron, Antônio Augusto Zanchetta; Hylton Matsuda, Mauro Veiga Fernandes, Osvaldo Luiz da Costa, Tarcísio Souza Alves pelo apoio técnico, pela amizade e pela boa vontade, sem os quais este trabalho seria impossível ser realizado. A vocês, muito obrigada.
- À M.Sc. Liliane Landini Mota Santos e ao Dr. João Alberto Osso Júnior, pela ajuda técnica-científica, pela amizade e pelo apoio sempre atuante. Muito obrigada.
- Às chefias da Diretoria T, pelo apoio na realização deste trabalho.
- A Wanderley de Lima, pela colaboração e sugestões.
- A Maria da Conceição C. Pereira, Cláudio Botelho e Wagner Dias, pela colaboração.
- Ao pessoal da TPI, especialmente o M.Sc. Jair Mengatti, a Ana Lúcia Pinheiro Vilela Lima e a M.Sc. Ho Woui Ling Wang.
- À toda equipe do CPD que ensina a utilização de programas aplicativos aos alunos de Pós-Graduação.
- A todas as outras pessoas, que direta ou indiretamente, contribuíram para a realização deste trabalho.
- Ao meu marido, Antônio Carlos, aos meus filhos, Carlos Henrique e Jéssica e aos meus sogros, Rubens e Dalva, pela paciência, pelo apoio e pelo carinho. Muito obrigada.
- Aos meus pais e irmãos, pelo incentivo, pelo carinho e apoio, durante toda minha vida acadêmica, sem os quais eu não teria chegado até aqui. Muito obrigada.

OTIMIZAÇÃO DO SISTEMA DE ALVO INTERNO DO CÍCLOTRON CV-28 DO IPEN-CNEN/SP

SUMAIR GOUVEIA DE ARAUJO

RESUMO

O ciclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP se destina prioritariamente à produção de radionuclídeos para utilização em diagnóstico na medicina nuclear. Dentre eles, podem ser citados ^{67}Ga e ^{111}In , obtidos a partir da irradiação de alvos sólidos de Zn e Cd. Até o momento, as irradiações foram realizadas com feixes externos, cujo inconveniente é a limitação da corrente de feixe devido ao sistema de extração, onde somente 50 a 70%, nos melhores casos, do feixe produzido pode ser extraído, tornando-se crítica para uma produção eficiente de radioisótopos. Para atingir correntes de feixe maiores, uma possível solução é a utilização de um sistema que permita a irradiação destes alvos sólidos com feixe interno, que aproveita quase a totalidade do feixe produzido. Visando tal benefício, o objetivo do presente trabalho foi o de modificar e otimizar o sistema de alvo interno do ciclotron CV-28, que possuía três falhas críticas no projeto, que inviabilizava sua utilização. Primeiro, o transporte do alvo até a posição de irradiação foi modificado de pneumático para acionamento com motor. Segundo, a refrigeração do alvo foi aumentada. Terceiro, considerado o mais grave, foi a modificação no sistema de trava do porta-alvo, que no sistema original saía de sua posição e caía dentro do tanque do ciclotron, levando o mesmo à pressão atmosférica. Isto implicou em uma mudança em toda a lógica de controle. Estas modificações tornaram o sistema mais versátil, com maior reprodutividade e confiabilidade que o original. Em irradiações em alvos de Zinco natural com correntes de feixe de até 80 μA a perda de massa foi desprezível. O rendimento obtido de ^{67}Ga , no final da irradiação, foi de 21,2MBq/ μAh (0,57 mCi/ μAh), compatível com os obtidos em irradiações com feixe externo.

OPTIMIZATION OF THE INTERNAL TARGET SYSTEM OF THE CV-28
CYCLOTRON AT IPEN-CNEN/SP

SUMAIR GOUVEIA DE ARAUJO

ABSTRACT

The CV-28 Cyclotron at IPEN-CNEN/SP is used mainly for radioisotope production to be utilized in nuclear medicine for diagnostic purposes. Among these radioisotopes we can cite ^{67}Ga and ^{111}In , which are obtained by irradiation of Zn and Cd solid targets. Up to now, the irradiations were performed in the external beam line, which has limitations in beam current due to the extraction system, that can at best extract between 50 and 70 % of the produced beam. This is a critical point for an efficient radioisotope production. A possible solution to achieve high beam currents is a system that allows the irradiation of these solid targets with the internal beam. In this case, the total produced beam can be used. For this, the objective of this work was to modify and improve the internal target system of the CV-28 Cyclotron, which had three critical points in the original project, that made the system useless. First, the transport of the target to the irradiation position was modified: the pneumatic tube was changed to a motor drive service. Secondly, the target cooling system was improved. Third and the most critical, the modification on the locking system of the target holder that could bring the cyclotron tank to atmosphere. These modifications implied on a change in all logical sequence of the target control. With these modifications the system became more versatile and showed more reproducibility and reliability than the original internal target system. The loss of mass in natural Zn targets irradiated with currents up to 80 μA was negligible. The production yield of ^{67}Ga obtained, at EOB, was 21.2 MBq/ μAh (0.57 mCi/ μAh), that is in good agreement with those obtained in the irradiation with external beams.

Índice.....	Página
CAPÍTULO 1 - INTRODUÇÃO.....	1
1.1 CONSIDERAÇÕES GERAIS.....	1
CAPÍTULO 2 - FUNDAMENTOS TEÓRICOS E REVISÃO DA LITERATURA.....	4
2.1 PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS.....	4
2.1.1 REATORES NUCLEARES PARA PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS.....	6
2.1.2 ACELERADORES NA PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS.....	6
2.2 DESCRIÇÃO GERAL DE UM CÍCLOTRON.....	10
2.3 TIPOS DE ALVOS UTILIZADOS NA PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS EM CÍCLOTRONS.....	13
2.3.1 ALVOS SÓLIDOS.....	13
2.3.2 ALVOS LÍQUIDOS E FUNDIDOS.....	14
2.3.3 ALVOS GASOSOS.....	15
2.4 SISTEMAS DE ALVOS UTILIZADOS EM CÍCLOTRONS.....	16
2.4.1 ALVOS PARA IRRADIAÇÕES COM FEIXES INTERNOS.....	16
2.4.2 ALVOS PARA IRRADIAÇÕES COM FEIXES EXTERNOS.....	16
2.4.3 ALVOS PARA IRRADIAÇÕES COM FEIXES PARASITAS.....	17
2.5 SISTEMA DE IRRADIAÇÃO COM FEIXE INTERNO - REVISÃO DE LITERATURA.....	18
CAPÍTULO 3 - MATERIAIS E MÉTODOS.....	32
3.1 CÍCLOTRON CV-28 DO IPEN-CNEN/SP.....	32
3.2 DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE IRRADIAÇÃO.....	38
3.2.1 SISTEMA ORIGINAL FORNECIDO PELA "THE CYCLOTRON CORPORATION (TCC).....	38
3.2.2 SISTEMA OTIMIZADO E MODIFICADO.....	43
3.2.3 SEQÜÊNCIA DE OPERAÇÃO DO SISTEMA OTIMIZADO.....	51
3.3 IRRADIAÇÕES EFETUADAS.....	60

CAPÍTULO 4 - RESULTADOS E DISCUSSÕES	62
4.1 MODIFICAÇÕES NO SISTEMA ORIGINAL	62
4.1.1 <i>SISTEMA DE TRANSPORTE DO ALVO PARA A POSIÇÃO DE IRRADIAÇÃO</i>	<i>62</i>
4.1.2 <i>REFRIGERAÇÃO DO ALVO</i>	<i>64</i>
4.1.3 <i>SISTEMA DE TRAVA</i>	<i>64</i>
4.2 IRRADIAÇÕES	66
4.2.1 <i>TEMPERATURA DA ÁGUA DE REFRIGERAÇÃO NA SAIDA DO PORTA-ALVO.....</i>	<i>68</i>
4.2.2 <i>IRRADIAÇÕES EM ALVO DE ZINCO NATURAL</i>	<i>69</i>
CAPÍTULO 5 - CONCLUSÕES	73
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	75

CAPÍTULO 1

INTRODUÇÃO

1.1 CONSIDERAÇÕES GERAIS

O estudo contínuo da energia nuclear tem proporcionado o desenvolvimento de diversas técnicas de aplicações. Dentre estas devido à sua crescente utilização pela sociedade, podemos destacar a produção de radioisótopos para: uso na medicina nuclear em diagnósticos, como fontes de calibração na metrologia e como traçadores radioativos. Nos últimos anos, verificou-se um rápido crescimento no uso de aceleradores de partículas para este propósito, em especial o uso de ciclotrons compactos ^(7,13,22,31,32,33), com os quais tem-se a vantagem de produzir radioisótopos de meia-vida curta e alta atividade específica.

O ciclotron CV-28 instalado no IPEN-CNEN/SP, do tipo isócrono, compacto, de energia variável, é uma fonte de irradiação capaz de acelerar prótons, dêuterons, Hélio-3 e partículas alfa, com energia máxima de 24, 14, 36, e 28 MeV, respectivamente. Trata-se de um equipamento de procedência americana, produzido pela "The Cyclotron Corporation" (TCC), em 1976 e em operação desde 1982 ⁽²⁹⁾.

No caso específico do ciclotron do IPEN-CNEN/SP, as irradiações se destinam prioritariamente à produção de radionuclídeos, que são incorporados a fármacos, utilizados em diagnósticos na medicina nuclear. Neste caso, os materiais irradiados são posteriormente processados quimicamente na Supervisão de Radioisótopos (TPI) do Instituto e o radionuclídeo em questão colocado na forma de um composto adequado para a sua utilização.

Para tal, toda uma infra-estrutura foi desenvolvida e implantada para a utilização das duas linhas de feixe disponíveis para a irradiação com feixe

externo, onde principalmente alvos sólidos são irradiados. Com isto, tornou-se possível a produção de radioisótopos, dentre os quais podem ser destacados:

A) PRODUÇÃO ROTINEIRA - são os radioisótopos enviados semanalmente a hospitais e clínicas:

A.1) ^{67}Ga - obtido a partir da irradiação de ^{68}Zn com prótons. É utilizado em diagnóstico de tumores e lesões inflamatórias.

A.2) ^{123}I - obtido a partir da irradiação de $^{124}\text{TeO}_2$ com prótons. É utilizado no mapeamento da tireóide e diagnóstico da glândula supra-renal, pela marcação do composto MIBG (metaiodobenzilguanidina).

B) PRODUÇÃO NÃO ROTINEIRA - são os radioisótopos em fase de otimização do processo de separação química:

B.1) ^{111}In - obtido a partir da irradiação de Cd natural com prótons. É utilizado na cintilografia da medula óssea e marcação de proteínas.

B.2) ^{51}Cr - obtido a partir da irradiação de V natural com prótons. É utilizado na marcação de componentes do sangue e de proteínas.

O ciclotron CV-28 do IPEN possui como características de projeto uma intensidade de feixe interno de 200 μA e externo de 60 μA , para prótons com energia de 24 MeV ⁽²⁹⁾. Entretanto, pode-se fornecer normalmente um feixe externo com uma corrente máxima de 35-40 μA . Esta limitação é devida principalmente à tecnologia no sistema de extração (defletor) dos aceleradores de íons positivos, que acaba absorvendo a maior parte do feixe não extraído. Com uma eficiência típica de 60%, para um feixe interno de 100 μA , 40 μA são perdidos no interior do tanque do ciclotron, causando, além desta perda, a ativação dos componentes internos, principalmente no sistema de deflexão. Na prática, no ciclotron do IPEN, em regime contínuo (nas irradiações de ^{68}Zn para a produção de ^{67}Ga), utilizou-se correntes de 25-30 μA no alvo durante 21 horas de irradiação, para uma produção em torno de 12.950 MBq (350 mCi) semanais. Em geral, estas intensidades de corrente são baixas para uma produção eficiente dos radioisótopos mais comuns em ciclotrons (^{67}Ga , ^{111}In), já que a demanda do mercado é muito grande, não conseguindo com esta corrente de feixe produzir

tais radioisótopos para atender a classe médica, uma vez que a corrente e o tempo já estão no seu limite máximo. O primeiro devido ao sistema de extração e o segundo devido à meia vida do radioisótopo formado.

Uma possível solução é a utilização de um sistema de alvo interno ^(13,19,25), ou seja, de um sistema que permita a irradiação destes alvos sólidos com o feixe interno, onde a intensidade de corrente de feixe disponível não é mais uma limitação. Isto diminuiria significativamente os tempos de irradiação e, conseqüentemente, o desgaste da máquina. Além disto, como a irradiação gera uma intensa radiação espalhada no alvo, a irradiação com feixe interno conta com a blindagem adicional da própria estrutura do ciclotron e, no caso do IPEN, da blindagem da caverna, que é superior a das salas experimentais, onde são irradiados os alvos com feixe externo.

Desta maneira, procurando sempre caminhos que visem uma otimização e diversificação de métodos que permitam irradiações para a produção de radioisótopos, o presente trabalho apresenta o desenvolvimento, instalação e testes de um dispositivo de alvo interno, que possibilita a irradiação de alvos sólidos no ciclotron.

CAPÍTULO 2

FUNDAMENTOS TEÓRICOS E REVISÃO DA LITERATURA

2.1 PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS

Os radioisótopos podem ser aplicados em muitos campos, particularmente em medicina, biologia e na indústria. Ao contrário da pesquisa básica fundamental envolvendo isótopos radioativos, os estudos que visam pesquisa aplicada requerem que os radioisótopos estejam disponíveis em quantidade suficiente e com alta pureza. Na medicina, os radioisótopos podem ser utilizados tanto em terapia como em diagnósticos e possuem uma série de restrições sob sua escolha: meia-vida, natureza e energia da radiação, comportamento biológico do produto, compatibilidade com o desempenho do equipamento e o tipo do exame efetuado. Estas restrições levam à utilização de radioisótopos com meia-vida variando de minutos até dias ^(18,20).

A tabela 2.1 mostra os métodos de produção de vários radioisótopos e sua utilização. Dentre os citados nesta tabela, o ^{99m}Tc é um isótopo muito próximo do ideal na medicina nuclear, pois pode ser eluído do gerador durante uma semana e emite uma radiação adequada para utilização em uma gama câmara. O único inconveniente é que ele não é um componente natural de moléculas biológicas ⁽¹⁸⁾.

A produção de radioisótopos para utilização em medicina nuclear pode ser feita utilizando-se reatores nucleares, aceleradores cíclotrons, aceleradores lineares e aceleradores Van de Graaf, sendo reatores e cíclotrons os mais utilizados.

Tabela 2.1 - Radioisótopos mais usados na indústria e medicina ⁽¹⁸⁾.

Nuclídeo	Meia-Vida	Método de Produção	Aplicação	Exemplos de Uso
¹¹ C	20,4 min	Cíclotron	PET	imagem e metabolismo cerebral
¹³ N	9,96 min	Cíclotron	PET	imagem do miocárdio, metabolismo cerebral
¹⁵ O	2,03 min	Cíclotron	PET	fluxo sanguíneo, metabolismo cerebral
¹⁸ F	110 min	Cíclotron	PET	imagens metabólicas do cérebro e miocárdio
⁶⁷ Ga	3,2 d	Cíclotron	SPET	localização de tumores em tecidos moles e lesões inflamatórias
¹¹¹ In	2,8 d	Cíclotron	SPET	marcação dos glóbulos brancos
¹²³ I	13 h	Cíclotron	SPET	imagem da tireóide, localização de tumores supra renais
²⁰¹ Tl	3,1 d	Cíclotron	SPET	imagem do miocárdio
⁸¹ Rb/ ^{81m} Kr	4,58 h / 13 s	Cíclotron	SPET	ventilação pulmonar
⁸² Sr/ ⁸² Rb	25,5 d / 75 s	Cíclotron	PET	imagem do miocárdio
⁵¹ Cr	27,8 d	Reator	SPET	marcação de glóbulos vermelhos, volume do sangue, taxa de filtração dos rins
⁹⁹ Mo/ ^{99m} Tc	66 h / 6 h	Reator	SPET	imagem do cérebro, glândulas salivares, coração, ossos
¹³¹ I	8 d	Reator	SPET	tratamento da Tireóide, cintilografia
¹³³ Xe	5,3 d	Reator	SPET	ventilação pulmonar
¹²⁵ I	60 d	Reator	-	ensaio "in vitro"
⁶⁰ Co	5,27 a	Reator	Irradiação	medidor de nível e de espessura; esterilização;
¹⁹² Ir	74 d	Reator	Irradiação	gamagrafia

2.1.1 REATORES NUCLEARES PARA PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS

As principais reações envolvendo nêutrons em reatores nucleares são de dois tipos:

a) do tipo (n,γ) , que é chamada de captura de nêutrons, onde há produção de um isótopo com número de massa maior, que pode ser estável ou não, sendo produzida por nêutrons térmicos, de $E=0,025$ eV. Como exemplos, pode-se citar $^{23}\text{Na}(n,\gamma)^{24}\text{Na}$, $^{27}\text{Al}(n,\gamma)^{28}\text{Al}$.

b) um segundo modo de produção em reatores é pelo processo de fragmentos de fissão, (n,f) , que ocorre quando um núcleo composto é transformado em dois fragmentos de fissão com a emissão de um ou mais nêutrons. No ^{235}U , ^{239}Pu e ^{233}U a fissão ocorre com nêutrons térmicos e no ^{233}Th e ^{238}U com nêutrons rápidos ($E>0,1$ MeV). Como exemplos pode-se citar: $^{235}\text{U}(n,f)^{140}\text{Xe} + ^{93}\text{Sr} + 3n$.

Os radioisótopos produzidos em reatores nucleares possuem excesso de nêutrons, decaindo principalmente pela emissão de partículas β^- . Se o núcleo é formado em um de seus estados excitados, contendo uma quantidade de energia armazenada temporariamente, há emissão de raios gama, pela emissão desta energia armazenada. Geralmente os radioisótopos formados em reatores possuem uma meia-vida mais longa do que os de aceleradores (além de decair por β^-) por isso são mais utilizados em terapia. Além disto, não são livres de carregadores, sendo produzidos com menor atividade específica⁽²⁵⁾. A maioria dos reatores utilizados para esse propósito foram instalados na década de 60 e ainda são largamente utilizados. Os principais radioisótopos de reatores são o gerador de $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$, ^{131}I , ^{133}Xe e ^{192}Ir .

2.1.2 ACELERADORES NA PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS

A maioria dos aceleradores usados para produção de radioisótopos são ciclotrons isócronos. Sua teoria foi desenvolvida completamente nos anos 60 e

tais máquinas têm sido construídas seguindo o mesmo projeto conceitual: o ciclotron isócrono compacto. No meio da década de 80, mais de 100 deste tipo foram instalados em universidades, com energia variável, e capazes de acelerar mais de uma partícula ($p, d, {}^3\text{He}^{++}, \alpha$), projetados para pesquisas em física nuclear, radioquímica e outras aplicações. Praticamente todas estas máquinas eram de prótons, que usavam fonte interna de íons pequena, do tipo LIVINGSTONE-JONES, que fornecia intensidade de criação de prótons bem acima do que qualquer alvo poderia receber e acima da capacidade do sistema de extração.

As companhias que produziam radioisótopos usavam o mesmo tipo de ciclotron, com algumas simplificações, as quais foram feitas por companhias comerciais, tipo Thompson-CSF (depois CGR - MeV), Scanditronix, The Cyclotron Corporation e outras.

A energia era determinada, principalmente, para produzir os isótopos comerciais ${}^{201}\text{Tl}$, ${}^{67}\text{Ga}$, ${}^{111}\text{In}$ e ${}^{123}\text{I}$. Os três primeiros têm sido produzidos com energias menores que 30 MeV enquanto que o ${}^{123}\text{I}$ tem sido produzido por 20 anos em várias energias, de acordo com a evolução do desempenho radioquímico e a pureza requerida. As primeiras produções começaram com 30 MeV em alvos de telúrio natural, com alto grau de contaminantes.

Baseando-se na reação ${}^{127}\text{I}(p,5n){}^{123}\text{I}$, que foi a mais utilizada de 1975 a 1985, mas requer um ciclotron com energia de pelo menos 70 MeV (menos conveniente para produção de isótopos com energia menores), somente 2 ciclotrons foram instalados. Atualmente usa-se a reação $(p,2n)$ sobre o ${}^{124}\text{Xe}$ enriquecido a 99,98% e 30 MeV é, novamente uma energia conveniente para produção de todos os isótopos comerciais de ciclotrons.

Desde o começo de sua operação, nos anos 60, a pesquisa em ciclotrons tem sido explorada para o inteiro domínio dos isótopos potencialmente úteis. Foram determinados vários caminhos de produção, contaminantes e eficiência de processos radioquímicos. Estes isótopos foram, ao mesmo tempo, testados em

muitos hospitais universitários do mundo. A corrente de feixe disponível em alvos externos naquela época era normalmente em torno de $10 \mu\text{A}^{(18)}$.

Uma grande variedade de aceleradores podem ser usados na produção de radioisótopos, como pode ser visto na tabela 2.2.

Tabela 2.2 - Tipos de Aceleradores ⁽²⁰⁾.

Classificação	Características	Energia Prótons (MeV)	Radioisótopos mais Produzidos
nível I	partícula única (p ou d)	≤ 11	^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F
nível II	partícula múltipla ou única (p,d)	≤ 20	^{11}C , ^{13}N , ^{15}O , ^{18}F (^{123}I , ^{67}Ga)
nível III	partícula múltipla ou única (p,d, ^3He , ^4He)	≤ 40	^{38}K , ^{73}Se , $^{76-77}\text{Br}$, ^{123}I , ^{67}Ga , ^{81}Rb (^{81}Kr), ^{111}In , ^{201}Tl , ^{22}Na , ^{57}Co
nível IV	partícula múltipla ou única (p,d, ^3He , ^4He)	≤ 100	^{123}I , ^{72}Se (^{72}As), ^{82}Sr (^{82}Rb) $^{117\text{m}}\text{Sn}$
nível V	partícula única (p)	≥ 200	^{26}Al , ^{32}Si , ^{44}Ti , ^{67}Cu , ^{68}Ge (^{68}Ga), ^{82}Sr (^{82}Rb), ^{109}Cd , $^{95\text{m}}\text{Tc}$, etc

Os ciclotrons de tamanho médio (nível III, $E \leq 40 \text{ MeV}$) são particularmente importantes, pois muitos radioisótopos comumente empregados em medicina nuclear, tais como, ^{67}Ga , ^{111}In , ^{123}I e ^{201}Tl , são produzidos em aceleradores deste tipo. Como será visto no próximo capítulo, o ciclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP, devido às suas características, pode ser enquadrado no nível III, tendo como limitação a produção de ^{201}Tl , devido a sua energia máxima de prótons ($E=24\text{MeV}$).

Naturalmente, alguns aspectos referentes à produção dos radioisótopos em ciclotrons diferem dos produzidos em reatores, principalmente devido à interação da radiação com o material alvo: os nêutrons não possuem carga elétrica.

No caso de aceleradores, os radioisótopos produzidos são deficientes em nêutrons e decaem por captura eletrônica ou por emissão de pósitrons, possuindo características ideais de decaimento para uso em diagnósticos "in vivo". O produto é geralmente livre de carregador e podem ser obtidas altas atividades específicas^(17,25).

Um dos problemas fundamentais na irradiação de alvo em aceleradores é que a densidade de potência efetiva é muito alta: altas correntes incidem em pequenas áreas, tipicamente 1 cm^2 , havendo necessidade de uma refrigeração adequada. Por exemplo, uma corrente de feixe de $30 \mu\text{A}$ de prótons com 24 MeV de energia gera uma potência de 720 W . Em 1 cm^2 , isto significa uma densidade de potência de 720 W/cm^2 . Além do problema da transferência de calor, que é um requisito básico na produção de radioisótopos em aceleradores, existem outras considerações igualmente importantes⁽²²⁾:

- conhecimento dos dados nucleares, para otimização do método de produção;
- conhecimento das propriedades químicas e mecânicas do material do alvo;
- capacidade do alvo suportar altas correntes de feixe;
- facilidade de separação química do produto radioativo;

O conhecimento dos dados nucleares são importantes para determinar a reação nuclear mais conveniente para uma determinada produção, sendo também importante na seleção da energia do feixe e espessura do alvo, de modo a ter o maior rendimento possível do isótopo de interesse, com o mínimo possível de impurezas presentes. Portanto, para uma determinação precisa destes parâmetros, torna-se necessário o conhecimento das funções de excitação das várias reações, que podem ser produzidas simultaneamente.

Além disto, as propriedades mecânicas e químicas do material alvo desempenham papel tão importante quanto ao da influência da secção de choque de uma reação nuclear. Desta maneira, podem ser utilizados metais, ligas, óxidos, líquidos e gases, contanto que possam resistir a altas correntes de feixe, não sofram fortes alterações químicas induzidas pela radiação, produzam alto rendimento radionuclídico e permitam fácil separação química ⁽²³⁾.

→ 2.2 DESCRIÇÃO GERAL DE UM CÍCLOTRON

O princípio de um ciclotron foi concebido por E.O.Lawrence, em 1929. A operação com sucesso da primeira máquina foi conseguida em 1931 por E.O.Lawrence e M.A. Livingston, para a aceleração de íons com alta energia, cujo objetivo era proporcionar bombardeamentos de núcleos atômicos. Ele é composto de dois eletrodos em forma de "D" ou "dês" dentro de uma câmara de vácuo, que estão entre os pólos de um grande eletroímã, o qual cria um campo magnético perpendicular a estes eletrodos. Os dois eletrodos ("dês") estão ligados a uma fonte de tensão alternada de alta frequência (RF), a qual cria um campo elétrico entre eles.

Através de uma fonte de íons, são produzidos íons no centro da câmara. Estes íons emitidos pela fonte, fazem uma trajetória em forma de espiral pela combinação dos campos elétricos e magnético ⁽¹⁾. O campo magnético força os íons a apresentarem trajetórias circulares perpendiculares a este campo e o campo elétrico faz com que elas sejam aceleradas. O campo magnético não acrescenta energia a partícula, apenas direciona-a para o intervalo entre os "des", onde o suprimento de energia por ação do campo elétrico é atuante.

A força eletromagnética ($q.v.B$) sobre uma partícula carregada com carga elétrica q movendo-se com velocidade v em um campo magnético de intensidade de fluxo B proporciona a força centrípeta, $(m \cdot v^2 / r)$, que faz a partícula se mover em uma trajetória circular de raio r . Então:

$$F = q \cdot v \cdot B = m \cdot v^2 / r$$

Onde v é ortogonal a B .

Por outro lado uma partícula carregada de carga q , colocada na presença de um campo elétrico uniforme E , sofre uma força elétrica ($q \cdot E$). Esta tem o mesmo sentido do campo elétrico se a carga for positiva e sentido oposto ao campo se a carga for negativa. Se a partícula está em repouso e um campo elétrico é aplicado, ela é acelerada uniformemente em direção do campo com uma força ($m \cdot a$). Então:

$$F = m \cdot a = q \cdot E$$

A energia final da partícula ($m v^2 / 2$) é determinada pelo raio r e pela intensidade de fluxo B . Assim:

$$r = m \cdot v / q \cdot B$$

E substituindo na expressão de energia temos:

$$W = (r \cdot q \cdot B)^2 / (2 \cdot m)$$

Supondo uma partícula carregada positivamente, um potencial negativo no "dê" de cima acelera a partícula para cima. No "dê", a partícula fica na região desprovida de campo elétrico, mas na presença de campo magnético entre os pólos. Então, ela não será acelerada como pode ser visto na figura 2.1. Se o sincronismo estiver correto, de modo que, quando a partícula alcance novamente o espaço entre os "dês", o campo elétrico já tenha sido invertido, a partícula será acelerada novamente, adquirindo energia adicional. Portanto ela se moverá em círculo de raio cada vez maior. Repetindo este processo, aumenta-se

gradualmente a energia da partícula, até que ela alcance a periferia dos "dês", sendo extraída através de um canal eletrostático.

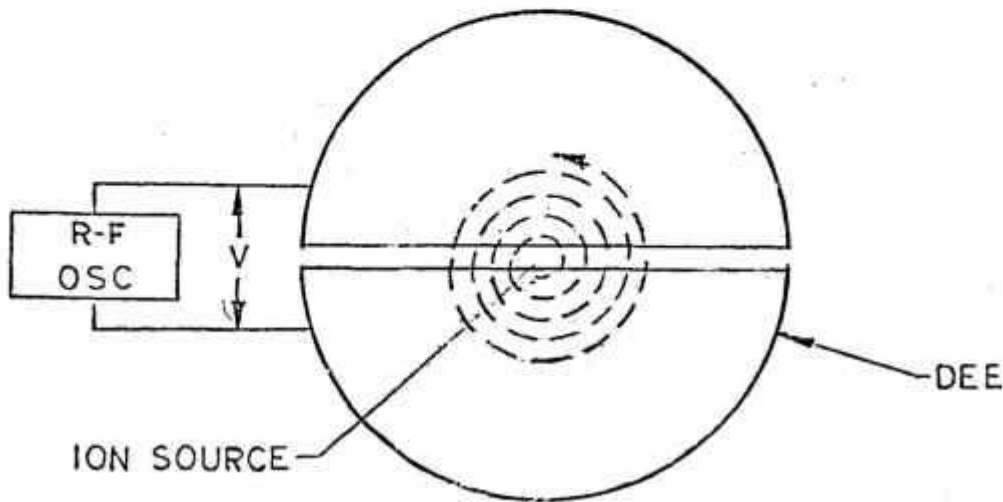


Figura 2.1 - Trajetória de uma partícula na presença de um campo magnético e elétrico.

A frequência de oscilação por segundo de uma partícula que se move perpendicularmente ao campo magnético, em um ciclotron, é dada por:

$$f = \frac{q \cdot B}{2\pi \cdot m}$$

Considerando que : $v = \omega \cdot r = \frac{r \cdot q \cdot B}{m}$ e $\omega = 2\pi \cdot f$

Se a velocidade da partícula é pequena comparada com a da luz, m pode ser considerada como constante. Como q e B são constantes, f é uma constante independente da velocidade da partícula. Na realidade, à medida que se aumenta a velocidade da partícula (altas energias), há uma variação na massa (efeito relativístico). Desta maneira, para manter o sincronismo faz-se uma compensação no campo magnético, através de setores (campo forte, campo fraco) de modo que a razão $\frac{B}{m}$ seja constante ^(1,12,29).

2.3 TIPOS DE ALVOS UTILIZADOS NA PRODUÇÃO DE RADIOISÓTOPOS EM CÍCLOTRONS

Uma vez decidida a produção de determinado radionuclídeo, em função da energia e corrente que podem ser obtidas, torna-se necessário a definição do estado físico do alvo, o qual é importante ser levado em consideração no projeto e construção de um sistema que permita a sua irradiação. Neste caso, o parâmetro mais importante que deve ser levado em consideração é a capacidade deste sistema suportar altas correntes de feixe.

Um sistema típico de alvo consiste basicamente de ⁽²³⁾:

- a) uma janela que separa o vácuo do cíclotron e o material alvo;
- b) o material alvo (sólido, líquido ou gás);
- c) o porta alvo e uma flange, que é isolada eletricamente para se medir a intensidade de corrente;
- d) um sistema de refrigeração, para janela do alvo e parador de feixe, que garanta uma dissipação de calor eficiente. Isto também inclui a seleção de materiais suporte para alvos sólidos e materiais para o corpo principal de alvos líquidos e gasosos.

Serão descritos a seguir os tipos de alvos utilizados em cíclotrons.

2.3.1 ALVOS SÓLIDOS

No caso de alvos na forma sólida, o material ideal deve ter alta estabilidade, alto ponto de fusão, alta condutividade térmica, que permita uma transferência de calor eficiente na interface do alvo e suporte. Por exemplo, no caso de alvos eletrodepositados, para melhorar a transferência de calor, coloca-se o mesmo com uma determinada inclinação e não perpendicular em relação ao feixe incidente. Isto proporciona uma menor densidade de corrente efetiva em um ponto (corrente distribuída numa área maior) e uma espessura menor de material eletrodepositado.

Além de alvos metálicos, óxidos, carbonatos e outros compostos químicos, que são termicamente estáveis, podem também ser utilizados e em alguns casos pode se usar sais fundidos (NaCl) ^(23,24).

Normalmente, quando o material é usado na forma metálica (alvos eletrodepositados) a refrigeração 2π é suficiente, isto é, refrigeração na parte posterior da placa suporte. No caso de materiais com baixa condutividade térmica, por exemplo: óxidos, a refrigeração 4π é necessária, ou seja, também na parte frontal do alvo ⁽²²⁾.

As condições citadas podem ser satisfeitas através dos seguintes métodos de preparação de alvos: eletrodeposição em suporte metálico (Ni, Cu, Pt), laminação de metais, soldagem em um suporte, fusão do material em um suporte metálico (ex.: Pt, Ni, Cu) e compressão de pós para obtenção de pastilhas ⁽²¹⁾.

Um exemplo de alvo sólido é o ^{123}I a partir do material alvo TeO_2 , enriquecido em ^{124}Te , e fundido em placa de platina. Por ser um óxido, não é bom condutor de calor. Portanto, necessita de refrigeração na parte frontal (com fina camada de água) e atrás do alvo. Outros exemplos são: ^{67}Ga , ^{201}Tl , ^{51}Cr , ^{111}In , ^{57}Co .

2.3.2 ALVOS LÍQUIDOS E FUNDIDOS

Diversas características podem ser mencionadas para que um composto líquido possa ser utilizado como um alvo ^(17,25):

- a) ter um ponto de ebulição alto, de modo a suportar a densidade de potência efetiva transmitida pelo feixe de íons durante a irradiação;
- b) ter uma porcentagem alta de átomos do alvo propriamente dito, para aumentar o rendimento de produção;
- c) ser líquido e estável nas temperaturas atingidas antes e durante a irradiação;
- d) ser resistente tanto química quanto fisicamente em relação à irradiação;

- e) ser compatível com os materiais utilizados tanto na irradiação quanto na separação química, isto é, com os materiais utilizados no processo de produção;
- f) ser comercialmente disponível e econômico;

Um exemplo típico de alvo líquido é o de H_2^{18}O , utilizado na produção de ^{18}F através da reação nuclear $^{18}\text{O}(p,n)^{18}\text{F}^{(22)}$.

No caso da utilização de alvos alvo fundidos, geralmente utilizam-se sais, os quais devem possuir as mesmas características citadas para os alvos líquidos. Além disto, o sal deve ter um ponto de fusão alto, para suportar altas correntes de feixe com o mínimo de perda de massa por evaporação ^(17,25). Um exemplo é a produção de ^{77}Br através da reação nuclear $^{79}\text{Br}(p,3n)^{77}\text{Kr} \rightarrow ^{77}\text{Br}$ com a utilização de alvo de sal fundido de $\text{KBr}^{(17)}$.

2.3.3 ALVOS GASOSOS

Como características básicas, os alvos gasosos devem ⁽²⁵⁾:

- a) possuir uma abundância isotópica alta em função do radionuclídeo de interesse, uma vez que gases enriquecidos em determinados isótopos são economicamente caros e exigem uma tecnologia de alvo complicada;
- b) não ser de natureza explosiva.
- c) ser ultra-puros, uma vez que se deseja uma atividade específica alta.

A utilização de altas intensidades de correntes em alvos gasosos resultam em uma redução na densidade do gás ao longo da direção do feixe, que sofre um alargamento devido ao espalhamento. Desta forma, é conveniente a utilização de alvos cônicos, que tem a vantagem adicional de necessitar uma quantidade menor de gás, importante quando se utiliza isótopos enriquecidos ⁽²²⁾. As dimensões do porta-alvo, bem como a pressão de gás utilizada devem ser selecionadas de modo que o intervalo de degradação de energia do feixe ao longo do gás coincida com o intervalo mais conveniente da função de excitação para a produção do radioisótopo desejado. Com a utilização de alvos gasosos

podem ser produzidos radioisótopos emissores β^+ como ^{11}C , ^{15}O e também ^{18}F através da reação $^{20}\text{Ne}(d,\alpha)^{18}\text{F}$.

2.4 SISTEMAS DE ALVOS UTILIZADOS EM CÍCLOTRONS

A tecnologia relativa a alvos, para irradiações em cíclotrons, destinados à produção de radioisótopos usados em medicina nuclear está suficientemente avançada. Qaim^(20,22) faz uma revisão destes sistemas usados rotineiramente, dividindo-os em três grupos principais: alvos para irradiações com feixes internos, com feixes externos e com feixes parasitas, que serão descritos a seguir.

2.4.1 ALVOS PARA IRRADIAÇÕES COM FEIXES INTERNOS

Como o próprio nome sugere, a utilização de feixes internos são feitas no tanque principal do cíclotron, nas últimas órbitas do feixe, antes que o mesmo seja extraído. Devido a dificuldades práticas relacionadas com a instalação de sistemas de irradiações no interior do cíclotron, não são irradiados com feixe interno alvos líquidos e gasosos. Normalmente são utilizados metais, alvos eletrodepositados e ligas que possuem boa condutividade térmica. O feixe interno não permite desfocalização e seu posicionamento no alvo pode apresentar algumas dificuldades, considerando-se particularmente, irradiações com diferentes partículas. Neste caso, a utilização de um termopar pode auxiliar a superar esta dificuldade. Diversos radioisótopos podem ser produzidos com feixe interno, por exemplo, ^{67}Ga , $^{75-77}\text{Br}$, ^{111}In , ^{201}Tl , etc.

2.4.2 ALVOS PARA IRRADIAÇÕES COM FEIXES EXTERNOS

A maior parte das irradiações em cíclotrons que visam a produção de radioisótopos para medicina nuclear são feitas utilizando feixes externos, onde existe mais versatilidade na forma do feixe extraído do que o feixe interno. Neste

caso, torna-se possível o uso de sistemas de desfocalização e varredura para o feixe, com a finalidade de diminuir a densidade de potência (kW/cm^2) efetiva no alvo, isto é, tornar o feixe homogêneo. Com o feixe externo, podem ser irradiados materiais nos três estados físicos: sólidos, líquidos e gasosos. A escolha da forma física do alvo depende de uma série de fatores, dentre os quais o tipo de ciclotron disponível, que determina os tipos de partículas aceleradas e a energia delas e o rendimento da reação. Um caso típico é o ^{123}I , que pode ser produzido por inúmeros processos⁽²¹⁾, utilizando-se alvos sólidos, líquidos e gasosos. No primeiro caso (alvos sólidos), o ^{123}I é produzido por processos diretos, sendo que os principais utilizam prótons ou dêuterons induzindo reações nucleares em isótopos de telúrio enriquecido, na forma de óxidos ($^{124}\text{TeO}_2$, $^{123}\text{TeO}_2$ e $^{122}\text{TeO}_2$), através das reações $^{124}\text{Te}(p,2n)^{123}\text{I}$, $^{123}\text{Te}(p,n)^{123}\text{I}$ e $^{122}\text{Te}(d,n)^{123}\text{I}$, e é produzido com alta pureza (99,9%) por processos chamados de indiretos, aqueles que fazem uso de um sistema precursor $^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$. O principal processo utiliza como alvo ^{124}Xe enriquecido em 99,8% e a produção é feita através da reação $^{124}\text{Xe}(p,2n)^{123}\text{Cs} \rightarrow ^{123}\text{Xe} \rightarrow ^{123}\text{I}$.

Quanto aos materiais utilizados na confecção dos sistemas de irradiação deve-se levar em consideração a boa condutividade térmica e sua não reatividade química com o alvo. A natureza química do produto radioativo e o método de separação são fatores decisivos na escolha do material de construção. Para as janelas, que separam o vácuo do ciclotron do alvo, devido às altas intensidades de corrente do feixe, são esperadas altas tensões, sendo utilizados materiais como Al, V, Ti, Ni, Cu, Nb, Havar, etc. Quanto ao porta-alvo, tem sido empregados materiais como Al, Ti, Ni, Cu, Pt, Ag, aço inoxidável, Inconel, etc.

2.4.3 ALVOS PARA IRRADIAÇÕES COM FEIXES PARASITAS

Em alguns aceleradores de prótons de alta energia, como LAMPF (Los Alamos), TRIUMF (Vancouver) e BLIP (Brookhaven), somente uma pequena fração da intensidade do feixe é usada para experimentos físicos, sendo o restante desviado para um depósito de feixe (beam dump). Estas posições,

chamadas de posições parasitas, tem vantagem considerável na produção de alguns radioisótopos de meia-vida longa por exemplo, geradores ^{68}Ge (^{68}Ga) e ^{82}Sr (^{82}Rb), e ^{77}Br , ^{117}Sn , etc. Devido à grande penetração dos prótons de alta energia são usados alvos sólidos relativamente espessos e sua refrigeração não é um problema sério. Entretanto, estas irradiações não são seletivas, principalmente quando se envolve o processo de espalhamento. Devido à formação de vários produtos radioativos, as separações químicas são mais difíceis e as impurezas isotópicas não podem ser separadas⁽²²⁾.

2.5 SISTEMA DE IRRADIAÇÃO COM FEIXE INTERNO - REVISÃO DE LITERATURA

A tecnologia de sistemas de alvos destinada a produção de radioisótopos para diagnósticos médicos está em um estágio de desenvolvimento satisfatório^(20,23,31,32,33), sempre levando em consideração as necessidades citadas no item 2.3. No caso de alvos sólidos, em particular, os feitos por eletrodeposição utilizam materiais enriquecidos, que dão uma melhor definição de energia para uma dada reação nuclear⁽¹⁸⁾ e podem ser projetados de modo a se utilizar em irradiações com feixes externo e interno. Na maioria dos cíclotrons compactos de prótons padrão, a extensão espacial do feixe no raio máximo (órbita máxima) é de 1 mm de largura e 5 mm de altura. Desta maneira, 100 μA de corrente de feixe e de energia de 30 MeV, significam uma potência de feixe de 3 kW, que é um limite prático nestes cíclotrons, devido ao sistema de extração, considerando-se uma eficiência de extração de 50% a 70%. Esta corrente extraída pode ser adequada para uma pequena produção, mas não pode ser considerada eficiente para uma produção comercial. Assim, algumas instituições desenvolveram seu próprio sistema de alvo interno, de modo a absorver esta potência efetiva de feixe e poder trabalhar com correntes maiores, que significa um aumento efetivo na produção. Para diminuir a densidade de potência efetiva, a superfície eletrodepositada do alvo era colocada tangencialmente ao feixe com um ângulo de alguns graus, ou, em alguns casos, com a forma o mais próxima possível do último raio de curvatura. Normalmente, a superfície irradiada era de

aproximadamente 80 mm de comprimento por 5 mm de altura. A refrigeração com água, da placa suporte do alvo (normalmente cobre), era construída de modo a ter turbulência máxima do fluxo de água na superfície interna do suporte e a confecção de canaletas neste permitiram dobrar a transferência de calor entre o cobre e a água. Com estas alterações, alguns produtores, usaram rotineiramente, intensidades de correntes de 150 μA a 200 μA nos alvos. Como estes cíclotrons de íons positivos podiam gerar correntes internas maiores do que estes alvos estáticos poderiam suportar, alguns produtores de radioisótopos desenvolveram alvos internos rotativos, capazes de absorver da ordem de 10 kW de potência de feixe⁽¹⁸⁾.

Três destes desenvolvimentos de sistemas de irradiação com feixe interno merecem ser mencionados e serão descritos a seguir.

Stellmacher et al.⁽²⁸⁾ desenvolveram um sistema automático de alvo para irradiações com altas correntes no feixe interno de um cíclotron compacto CV-28, idêntico ao instalado no IPEN-CNEN/SP, para a produção, dentre outros radioisótopos, do ^{75}Br ($T_{1/2}=1,6\text{h}$). Neste desenvolvimento, levou-se em conta a utilização de correntes de feixe maiores que 100 μA e, como era esperada taxa de exposição no alvo de cerca de 500 R/h, o sistema deveria ser controlado remotamente e o alvo retirado automaticamente. No caso, o tubo pneumático do acionamento original foi trocado por um acionamento com motor, através de um fuso, conforme pode ser visto na figura 2.2.

O sistema possui três componentes principais: sistema de transporte do alvo, pré-câmara estanque a vácuo com a estação de remoção do alvo e o suporte do alvo propriamente dito. O alvo é colocado manualmente no porta-alvo e fixo em sua posição por dois grampos, que recebem um torque definido de um motor. Após a irradiação, a remoção do alvo é feita pelo próprio sistema de grampos: o grampo inferior gira 90° e o alvo cai em uma blindagem.

Uma célula fotoelétrica indica a passagem do alvo e a blindagem é fechada por um elevador pneumático rotativo. Todos os estágios do processo são

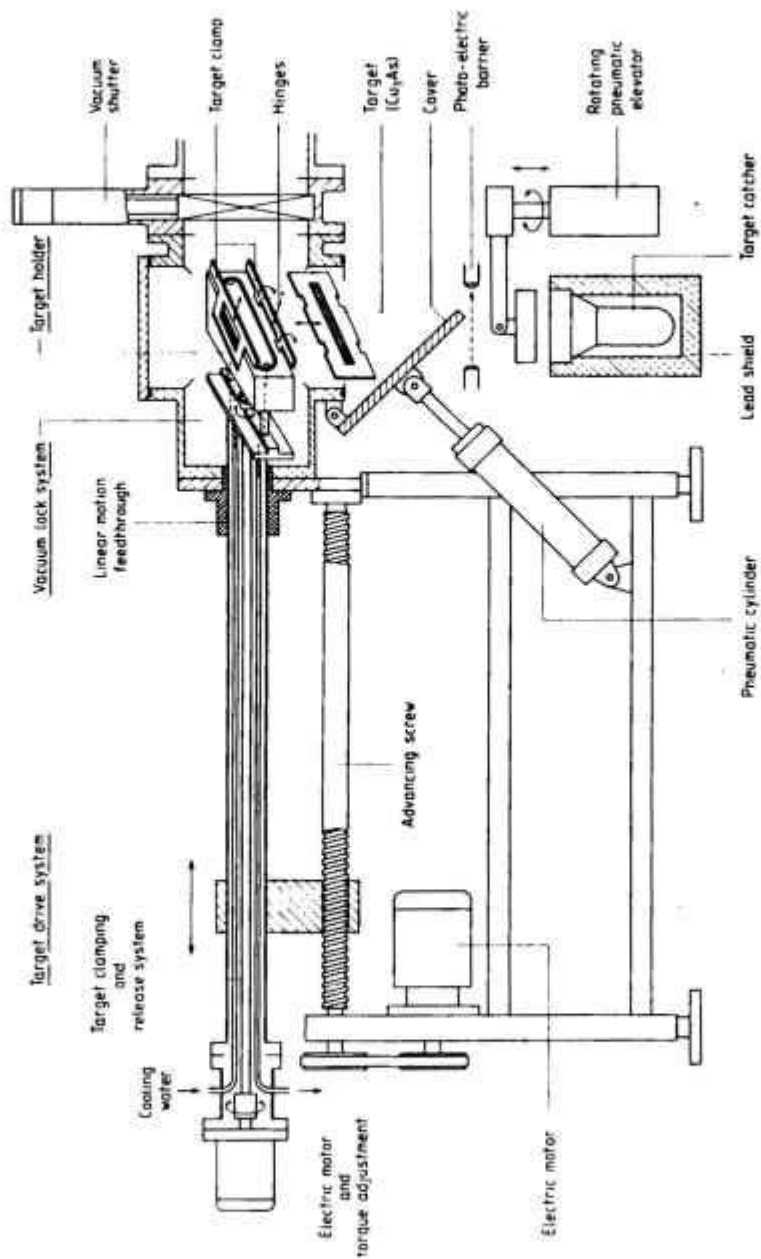


Figura 2.2 - Diagrama esquemático do sistema de alvo interno desenvolvido para o ciclotron CV-28 de Jülich - Alemanha⁽²⁸⁾.

seguidos em um painel colocado na sala de controle do ciclotron. O sistema possui algumas vantagens em relação ao sistema pneumático original:

- segurança operacional e confiabilidade;
- eliminação do risco de contaminação externa;
- redução significativa da dose ao trabalhador;
- retirada automática do alvo, pelo uso de um programa de computador;
- indicação da incidência do feixe na placa de prata suporte do alvo.

Com este sistema, Blessing et al.^(2,3) produziram ^{76}Br e ^{77}Br através das reações $^{75}\text{As}(^3\text{He}^{++},3n)^{76}\text{Br}$ e $^{75}\text{As}(\alpha,2n)^{77}\text{Br}$, usando alvo de Cu_3As e energias do feixe de 36 e 28 MeV, para $^3\text{He}^{++}$ e partículas alfa, respectivamente. Além do feixe interno, os alvos de Cu_3As foram irradiados com feixe externo⁽³⁾, com incidência frontal no alvo. Como comparação, para o feixe externo a corrente foi de 30 μA e para o interno de 100 μA . O alvo utilizado com feixe externo ($\phi=13$ mm) era soldado em um suporte de cobre, refrigerado com água a um fluxo de 10 l/min. Com a corrente de 30 μA de $^3\text{He}^{++}$, a densidade de corrente efetiva era de 1800 W/cm^2 . No caso do feixe interno, o alvo também era soldado em um suporte de cobre, refrigerado à água. O ângulo de incidência do feixe no alvo era de $3,2^\circ$, e a corrente de 100 μA . Embora esta corrente fosse muito maior do que a do feixe externo, devido à maior área atingida pelo feixe, a densidade de potência efetiva no alvo era de aproximadamente 400 W/cm^2 . Devido ao ângulo de incidência do feixe, para o mesmo intervalo de degradação de energia, a espessura do alvo era de 7 μm para o alvo interno e 135 μm para o externo. Com isto, este trabalho mostrou que, com a utilização do feixe interno em alvos de Cu_3As , através da reação ($^3\text{He},3n$), era possível obter atividade de ^{76}Br maior que 3.700 MBq(100 mCi).

A otimização deste alvo⁽²⁾, onde o ângulo de incidência do feixe sobre a camada de Cu_3As foi aumentado de $3,2^\circ$ para $6,2^\circ$, tornou possível aumentar esta produção e torná-la rotineira. Assim, com a utilização do sistema de alvo interno, iniciou-se produção rotineira de ^{76}Br em irradiações com $^3\text{He}^{++}$ de 36 MeV e correntes de 100 μA , por duas horas e produção de ^{77}Br , em irradiações com partículas alfa de 28 MeV e correntes de até 120 μA , por períodos de até 6 horas.

Com isto, atingiu-se, no final da irradiação, uma quantidade de cerca 7.400 MBq (200 mCi) de ^{75}Br e de cerca de 1.776 MBq (48 mCi) de ^{77}Br .

Com a finalidade de se tornarem fornecedores de radioisótopos para sua própria região e para a América do Norte, Lambrecht et al.⁽²³⁾, do Centro de Pesquisas e Hospital Especializado King Faisal, da Arábia Saudita, otimizaram o sistema de alvo interno, modelo 4010, do ciclotron CS-30, fabricado pela TCC (The Cyclotron Corporation). No sistema fornecido pelo fabricante, o porta-alvo propriamente dito era fixado na ponta da haste de um pistão, que levava a água de refrigeração. Ele era colocado no lugar simplesmente por compressão e movido pneumáticamente tanto no avanço até a posição de irradiação quanto no recuo para a remoção do alvo irradiado. Este sistema de fixação e transporte se mostrou insatisfatório, apresentando falhas similares ao sistema de alvo do ciclotron CV-28 do IPEN, também fornecido pela TCC, principalmente durante o recuo, onde o alvo caía da haste, levando o tanque principal do ciclotron à pressão atmosférica. Como o interesse era se tornar um fornecedor de radioisótopos, isto causava atrasos no programa de produção e a exposição a altas doses, devido à manipulação do alvo irradiado. Para contornar estes inconvenientes na utilização do sistema foi desenvolvido neste centro de pesquisas um sistema de fixação eficiente do porta alvo na haste e o movimento de avanço e recuo foi mudado de pneumático para mecânico. O sistema modificado utiliza a pré-câmara, sistema de vácuo e o sistema de refrigeração do original da TCC. Quanto à refrigeração do alvo, foi instalada uma bomba de modo a atingir um fluxo de água de 19 L/min com pressão máxima de $8,3 \times 10^5$ Pa. O fluxo do sistema original era de apenas 5,7 L/min. A entrada da água foi feita pelo centro do alvo e a saída pelas laterais. Além disto, a espessura da camada de água na parte posterior da placa suporte do alvo foi aumentada de 1,0 mm para 1,8 mm. Com isto, a refrigeração do alvo aumentou de um fator de 2. Com estas modificações e a água de refrigeração mantida em 7°C , tornou-se possível operar o mesmo alvo com correntes de feixe de 30 a 60% maiores do que o conjunto original da TCC. Assim, foi construído neste Instituto um sistema de alvo interno confiável e foi usado na produção rotineira desde 04/1986. A tabela 2.3 mostra um resumo das produções de ^{67}Ga , ^{111}In , ^{123}I e ^{201}Tl durante 10/1986 e

08/1987 ⁽²³⁾. O rendimento de produção corresponde a uma média de 30 produções sequenciais.

Tabela 2.3 - Produções Rotineiras de ⁶⁷Ga, ¹¹¹In, ¹²³I e ²⁰¹Tl entre 10/1986 e 08/1987 feitas no ciclotron CS-30 do Centro de Pesquisas e Hospital Especializado King Faisal - Árabia Saudita, usando o sistema de alvo interno ⁽²³⁾.

Radioisótopo	Alvo	n ^o Irradiações	Corrente (μA)	Rendimento Bq x10 ⁶ /μAh
⁶⁷ Ga	⁶⁸ Zn-99,3%	84	50	1,8±0,1
¹¹¹ In	¹¹² Cd-98,3%	72	40	2,1±0,3
¹²³ I	¹²⁴ Te-96,6%	145	30	5,4±0,6
²⁰¹ Tl	²⁰³ Tl-96,2%	196	65	5,1±0,5

Um terceiro exemplo típico é o desenvolvimento de um alvo interno giratório para altas intensidades de correntes para o ciclotron do Instituto Nacional de Radioelemento ^(18,19), Fleurus, Bélgica. Este trabalho foi feito em colaboração com o Centro de Pesquisas de Ciclotron da Universidade Católica de Louvain, Bélgica. Este desenvolvimento visava a produção de ²⁰¹Tl, ¹¹¹In e ⁶⁷Ga com prótons de 30 MeV, podendo o alvo suportar potências de feixe até 10 kW (333 μA no alvo) e velocidade de rotação de 3000 rpm. Desta maneira, o projeto deveria permitir o uso de material alvo com ponto de fusão relativamente baixo (300 °C), com o intuito de limitar drasticamente a taxa de evaporação de materiais como o Cádmiio. Para atingir estas exigências, temperaturas de 150 °C na superfície do alvo nunca deveriam ser ultrapassadas, para potências de feixe de 10 kW. Todas estas condições levaram ao projeto de um alvo rotativo de forma cônica, com um eixo de rotação localizado abaixo do plano médio do

acelerador, conforme pode ser visto na figura 2.3. O eixo de rotação está 27,5 mm abaixo do plano médio do ciclotron.

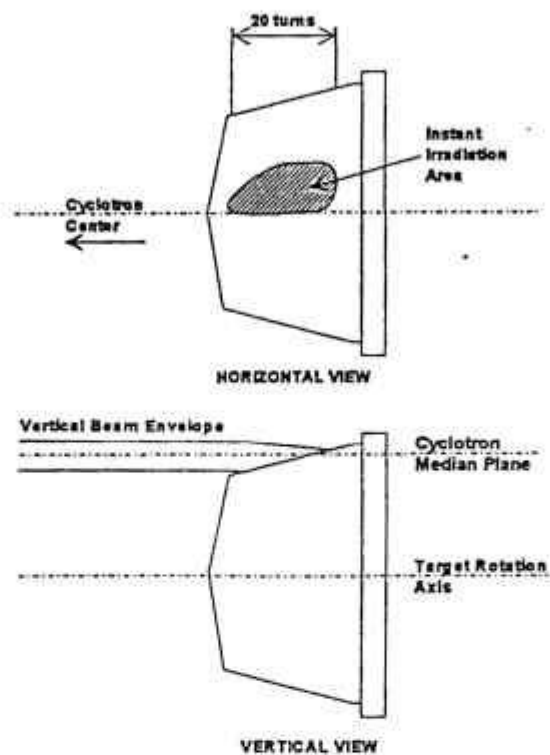


Figura 2.3 - Alvo interno desenvolvido para o ciclotron do I.R.E., Bélgica, mostrando o posicionamento do feixe e a área irradiada⁽¹⁸⁾.

As principais características de projeto deste alvo são:

- energia do feixe incidente: 30 MeV
- intensidade de corrente : 333 μA
- partículas: prótons
- potência do feixe: 10 kW
- velocidade de rotação: 3000 rpm
- fluxo da água de refrigeração: 60 l/min
- espessura do suporte do alvo: 1,2 mm
- temperatura máxima da superfície: 150 $^{\circ}\text{C}$
- área útil do alvo: 50 cm^2 .

Embora a quantidade de material alvo utilizado seja grande (6 g de ^{203}Tl enriquecido comparado com 1,7 g em alvos fixos) a superfície irradiada também é grande, permitindo o uso de correntes altas. Além disto, o alvo gira a 10 m/s oposto ao fluxo de água de 10 m/s, resultando em velocidade aparente da água de 20 m/s e uma turbulência muito boa. Como segurança operacional foi desenvolvido sistemas de resposta rápida que detectam variações na velocidade de rotação, queda na pressão da água de refrigeração, vibração anormais e consumo excessivo de potência do motor. Em caso de qualquer falha operacional um sistema de segurança eletrônico rápido reduz a amplitude de RF do cíclotron pela metade do valor nominal e em menos de 1 ms a aceleração das partículas é interrompida.

Em testes preliminares⁽¹⁹⁾ o suporte de cobre do material alvo foi testado com sucesso por 1 h a 450 μA com prótons de 30 MeV (13,5 kW de potência do feixe) e por 8 h a 250 μA . Também, com uma camada de 100 μm de Cd (escolhido por sua alta taxa de evaporação) o sistema foi testado com correntes de até 300 μA (9 kW) sem qualquer perda significativa do material alvo.

Este sistema tem sido utilizado em produções de radioisótopos por quatro anos com correntes médias de 550 μA e em algumas irradiações a 800 μA ⁽¹⁸⁾. Boa parte deste aumento de corrente foi atribuído a um novo método de deposição do alvo desenvolvido em Fleurus, Bélgica, a partir de 1988.

Além destes três exemplos típicos de desenvolvimento existem outros centros produtores de radioisótopos que desenvolveram e usaram seus próprios sistemas de alvo interno para a sua produção rotineira.

Dahl e Tilbury⁽⁸⁾ relatam o uso do cíclotron compacto do Instituto Sloan Kettering de Pesquisa de Câncer (Nova Iorque) na produção de ^{52}Fe , ^{67}Ga , ^{111}In e ^{123}I para propósitos médicos com seu sistema de alvo interno. Os alvos possuíam diâmetros de 1 1/16" a 1 5/16" e eram posicionados a aproximadamente 5° com o

feixe incidente. A tabela 2.4 mostra as intensidades de corrente utilizadas em cada caso.

Tabela 2.4 - Características gerais da utilização do ciclotron do instituto Sloan Kettering de Pesquisa de Câncer de Nova Iorque com alvo interno⁽⁶⁾.

Alvo	Radioisótopo	Partícula	Energia (MeV)	Corrente (μA)
Sb	^{123}I	$^3\text{He}^{++}$	23	100
Cd	^{111}In	Prótons	15	70
Zn	^{67}Ga	Dêuterons	8	200
Cr	^{52}Fe	$^3\text{He}^{++}$	23	150

Krasnov et al.⁽¹¹⁾ descrevem a produção de radioisótopos, com sistema de alvo interno, do ciclotron do Instituto de Física e Engenharia de Potência de Obninsk, Russia. As características do feixe interno podem ser vistas na tabela 2.5. O tempo de utilização do ciclotron é de cerca de 7.200 h por ano, sendo 82% do tempo anual para a produção de radioisótopos e os 18% restantes destinados de à manutenção, mudança do modo de operação do ciclotron e troca de alvos. Para controlar a distribuição vertical do feixe são usadas três pontas de prova em forma de finas lâminas. Uma outra, na posição vertical identifica a distribuição radial do feixe no raio final. A posição do centro da órbita do feixe é feita pelo método de duas pontas de prova. Os alvos ficam posicionados a 9° com o feixe incidente e possuem uma área de material depositado de $30 \times 100 \text{ mm}^2$. Na parte posterior do alvo são feitas ranhuras, para melhorar a refrigeração. A temperatura da superfície é medida por meio de um pirômetro ótico.

Tabela 2.5 - Característica do feixe interno do ciclotron do Instituto de Física e Engenharia de Potência de Obsninsk, Rússia⁽¹¹⁾.

Partículas	Energia(MeV)	Corrente (μ A)
Prótons	20,5	1.000
Deuterons	20,5	1.000
Alfas	41,0	400

Embora 20 nuclídeos sejam produzidos, 90% do tempo de irradiação são dedicados à produção de cinco deles , conforme listados na tabela 2.6.

Tabela 2.6 - Principais Radionuclídeos produzidos no Instituto de Física e Engenharia De Potência de Obninsk, Russia⁽¹¹⁾.

Radionuclídeos	Alvo	Partícula	Corrente(μ A)	T _{alvo} (^o C)
²² Na	Mg nat.	d	500	250
⁵⁷ Co	⁵⁸ Ni -99%	p	600	250
⁶⁷ Ga	⁶⁸ Zn -98%	p	250	150
⁶⁷ Ga	⁶⁷ Zn - 90%	d	250	150
¹⁰⁹ Cd	¹⁰⁹ Ag - 96%	d	500	200
¹¹¹ In	¹¹² Cd - 98%	p	100	80
¹¹¹ In	¹¹¹ Cd - 96%	d	100	80

Boothe et al.⁽⁵⁾ fazem um resumo da produção comercial de radioisótopos do ciclotron Cs-30 (The Cyclotron Corporation) do Centro Médico Monte Sinai, Miami - USA, durante o período de 1988 até agosto de 1992. A tabela 2.7. mostra o número de irradiações feitas, ano a ano.

Tabela 2.7 - Número de irradiações com feixe interno e externo de 1989 até agosto de 1992 no Centro Médico Monte Sinai, Miami - USA⁽⁵⁾.

Radioisótopo	Feixe	Numero de irradiações				
		1988	1989	1990	1991	1992
⁶⁷ Ga	Interno	36	107	100	78	110
²⁰¹ Pb(²⁰¹ Tl)	Interno	50	0	0	30	0
¹¹¹ In	interno	7	0	0	0	4
Diversos	Interno	0	0	0	2	12
¹⁸ F	Externo	66	6	13	9	8
Diversos	Externo	52	0	0	7	0

Nota-se na tabela que as produções de ⁶⁷Ga, ²⁰¹Tl e ¹¹¹In foram feitas somente com a utilização do alvo interno do ciclotron e somente a produção do ¹⁸F com feixe externo. Na tabela, as irradiações diversas correspondem às efetuadas para pesquisas, sendo feitas com feixes interno e externo; no caso de feixe externo para a obtenção de ¹⁵O a partir de H₂¹⁵O. Também, a produção de ²⁰¹Tl foi eliminada quando a produção de ⁶⁷Ga aumentou significativamente. Neste Centro, ⁶⁷Ga constitui o maior volume da produção comercial. A tabela 2.8. apresenta um resumo das produções de ⁶⁷Ga no período.

Tabela 2.8 - Resumo das produções de ^{67}Ga entre 1989 e 1992⁽⁵⁾.

Ano	Carga integrada média ($\mu\text{A}\cdot\text{h}$)	Tempo de irradiação médio (h)	Rendimento ($\text{MBq}/\mu\text{A}\cdot\text{h}$)	Corrente média (μA)
1989	3819	34,8	161,69	109,7
1990	4474	34,0	158,73	131,6
1991	3286	25,1	156,51	130,9
1992	2728	23,1	176,12	118,1

Da tabela 2.8, pode ser notado que as correntes utilizadas nas produções comerciais com alvo interno, utilizando prótons de 30 MeV, estão no intervalo de 110 a 130 μA .

Visando a quantificação da biodistribuição do conjugado radioisótopo-anticorpo, através de tomografia por emissão de pósitrons (PET), para possíveis aplicações terapêuticas, Meijs et al.⁽¹⁵⁾ utilizaram o sistema de alvo interno do ciclotron do Centro de Radionuclídeos da Universidade Ligne de Amsterdam - Holanda, para a produção de grandes quantidades de ^{89}Zr . Neste caso, 4.810 MBq/h (130 mCi/h) de ^{89}Zr foram produzidos pela reação nuclear $^{89}\text{Y}(p,n)^{89}\text{Zr}$ com prótons de 14 MeV e correntes de 97 μA .

Com a finalidade de estudar o metabolismo do alumínio no ser humano, para melhor entender o mal de Alzheimer, Dmitriev et al.⁽⁹⁾ descrevem a produção de ^{26}Al com alvo interno, no ciclotron do Laboratório Flerov de Reações Nucleares, Moscou-Rússia. Para a produção, foi utilizada a reação $^{24}\text{Mg}(^4\text{He},pxn)^{26}\text{Al}$. O alvo consistia em uma placa de 100x50 mm, feita de magnésio, com 99,95% de pureza. As irradiações foram feitas com ^4He , de

35 MeV de energia e correntes de 80 μA durante 100 h. A área irradiada foi de 40x30 mm e a atividade obtida de 2,1 kBq.($5,67 \times 10^{-5}$ mCi).

A produção de ^{82}Sr para aplicações médicas no campo de cardiologia é descrita por Vereshchagin et. al.⁽³⁰⁾, do Instituto de Energia Atômica de Kurchatov, Moscou, Russia. Foram três os objetivos principais deste trabalho: desenvolvimento de um sistema de alvo que pudesse ser irradiado nas órbitas internas do ciclotron, com correntes de prótons ($E_p=70$ Mev) de até 100 μA , determinação experimental do rendimento de ^{82}Sr usando a reação $^{85}\text{Rb}(p,4n)^{82}\text{Sr}$ e a determinação da pureza radionuclídica do produto. Para tal, foi desenvolvido um sistema rotatório de alvo interno, com frequência de 6 Hz, para a irradiação de alvos de RbCl. As irradiações foram feitas com correntes de até 75 μA por algumas dezenas de horas, sendo o rendimento obtido, no fim da irradiação, de 2,775 MBq/ $\mu\text{A.h}$ (75 $\mu\text{Ci}/\mu\text{A.h}$).

Blessing et al.⁽⁴⁾ desenvolveram um sistema de irradiação com feixe interno que permite medidas de funções de excitação pela técnica de empilhamento de folhas. O alvo consiste de um corpo em alumínio com um suporte ajustável para as folhas. Uma placa de alumínio colocada atrás do suporte tem a função de frear totalmente o feixe. Neste experimento visou-se testar a qualidade do feixe incidente, primeiro, relacionada com o perfil do feixe, segundo, com a degradação de energia nas folhas. Para medições do perfil de feixe foram escolhidas duas folhas monitoras de cobre, a primeira, colocada na frente do feixe, e uma outra, no meio do empilhamento. Cada uma delas foram cortadas em pedaços de 1 mm² (cerca de 230 pedaços em cada folha) e foram medidas as atividades relativas de cada pedaço.

A degradação de energia no empilhamento das folhas de cobre foi calculada supondo que o feixe incidia perpendicularmente. Para tal, folhas monitoras de cobre foram colocadas em diferentes posições de empilhamento. Este sistema de alvo interno mostrou-se conveniente para medições de secções de choque através da técnica de empilhamento, tanto do ponto de vista do perfil como do posicionamento do feixe. Ele foi testado com sucesso⁽²⁷⁾ em medidas de

secções de choque das reações $^{124}\text{Te}(p,n)^{124}\text{I}$ e $^{124}\text{Te}(p,2n)^{123}\text{I}$ no intervalo de energia dos prótons de 20,5 a 31,2 MeV.

CAPÍTULO 3

MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 CÍCLOTRON CV-28 DO IPEN-CNEN/SP

O ciclotron modelo CV-28 do IPEN-CNEN/SP, fabricado pela "The Cyclotron Corporation" (TCC), gerenciado atualmente pela Coordenadoria de Aplicações na Engenharia e na Indústria (TE), tem sido utilizado, prioritariamente, para a produção de radioisótopos utilizados em diagnósticos na medicina nuclear e, em menor frequência, para diversas aplicações, tais como, análise de elemento traço, estudo de desgaste de peças metálicas, estudo de danos de radiação, fabricação de fontes de calibração, etc.

O modelo CV-28 é um acelerador de partículas do tipo isócrona, também chamado de variável, definido por três setores radiais, incorporados às peças polares e possui quatro bobinas auxiliares para ajuste do perfil radial do campo, o que permite acelerar os quatro tipos de partículas: prótons, dêuterons, $^3\text{He}^{++}$ e partículas alfa. Pode ser considerado como compacto, pesando 23 toneladas, localizado em uma área de 75 m² e consome uma potência elétrica de aproximadamente 500 kVA. Sua infra-estrutura é composta dos seguintes periféricos:

- a) Sistema de fontes de alimentação das bobinas de campo, fonte de íons, deflexão, centralização, sistema de radiofrequência e de deflexão magnética;
- b) Sistema de refrigeração de água deionizada;
- c) Sistema de ar comprimido;
- d) Sistema de ar condicionado;
- e) Sistema de vácuo.

O equipamento está localizado entre quatro alas, com paredes de concreto, que servem de blindagem: uma caverna, onde está instalado o ciclotron propriamente dito e três alas experimentais, nas quais os alvos são irradiados com feixe externo. A figura 3.1 mostra uma distribuição do prédio, onde estão instalados o ciclotron e seus periféricos.

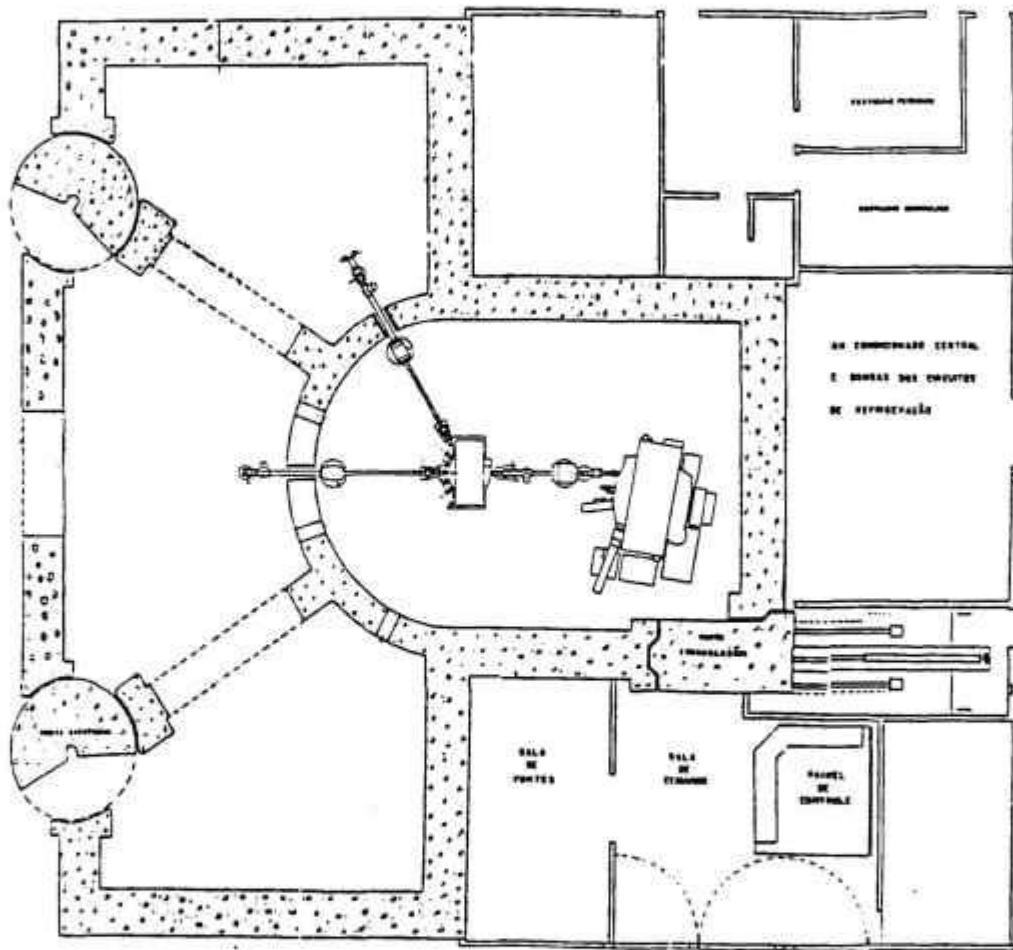


Figura 3.1 - Distribuição do prédio, onde estão instalados o ciclotron e seus periféricos.

Na tabela 3.1, podem ser vistas as principais características nominais do ciclotron CV-28 do IPEN. É importante salientar que, a coluna de corrente interna corresponde aos valores que podem ser utilizados com alvo interno.

Tabela 3.1 - Características Nominais do ciclotron CV-28 do IPEN⁽²⁹⁾

Partícula	Energia (MeV)	Corrente Externa (μA)		Corrente Interna (μA)
		Mínima	Máxima	
p	2-24	40	60	200
d	4-14	50	100	300
$^3\text{He}^{++}$	6-36	5	50	135
$^4\text{He}^{++}$	8-28	6	40	90

Tolerância: $\pm 0,5$ MeV em E_{min} e ± 1 MeV em $E_{\text{máx}}$.

Resolução: 0,5 % ou 50 keV (o que tiver maior valor)

A figura 3.2 mostra uma vista esquemática da câmara de vácuo (principal) do ciclotron (região central de criação e aceleração dos íons), onde são observados a fonte de íons, os "dês" e o sistema de extração.

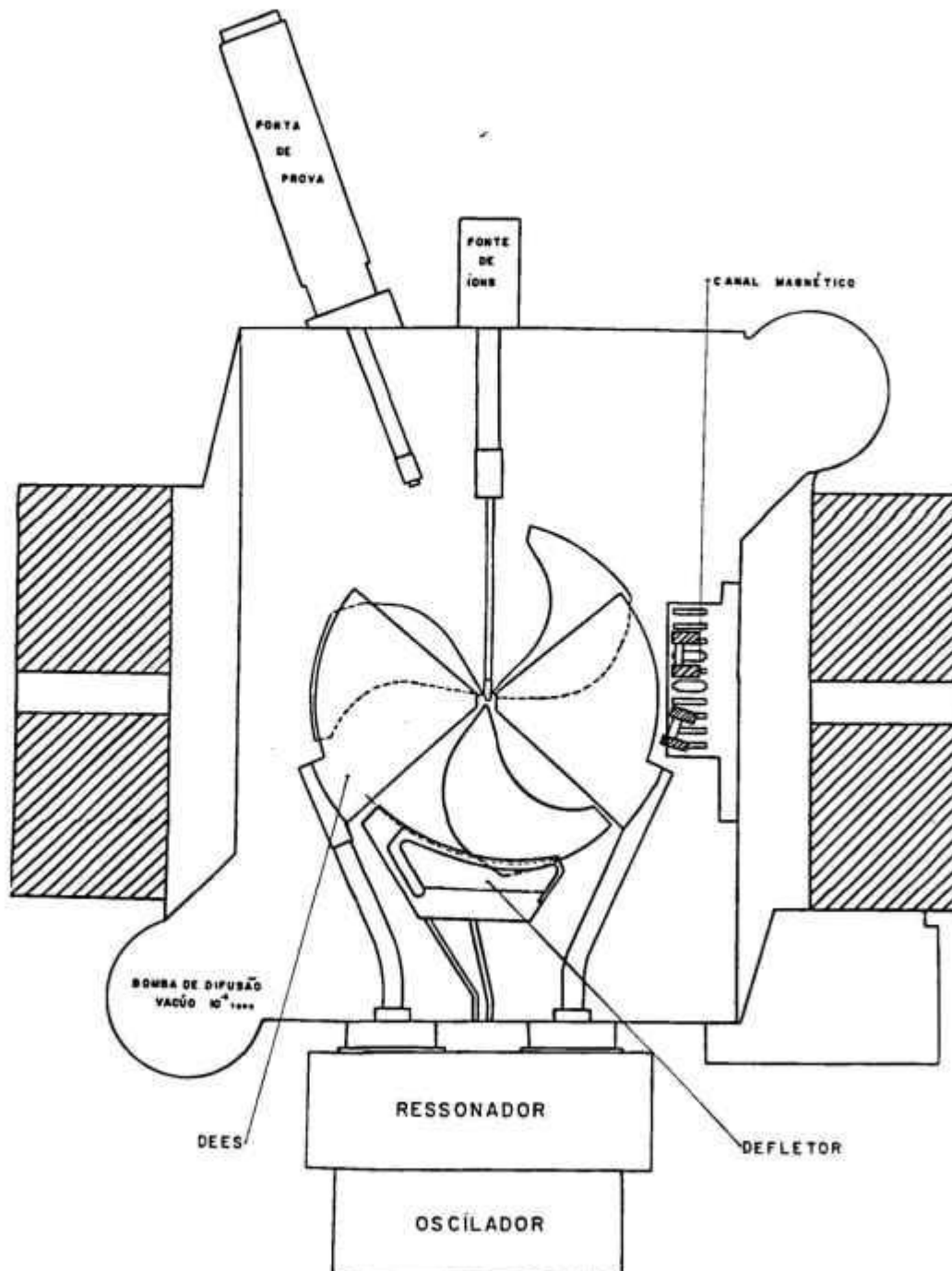


Figura 3.2 - Câmara de vácuo do ciclotron.

A câmara de vácuo do ciclotron possui um diâmetro polar de 965 mm e raio máximo de extração de 420 mm. A intensidade do campo magnético médio é de 17,4 kGauss. O sistema de radiofrequência opera com uma frequência fixa no intervalo de 6,0 a 25,5 MHz, dependendo da energia e da partícula acelerada⁽²⁹⁾.

O imã do ciclotron CV-28 consiste de três regiões de campo forte (montes) e três regiões de campo fraco (vales), simetricamente dispostos em azimute, para fornecer focalização, por setor, do feixe de íons durante a aceleração. Os montes são fabricados com ferro e possuem forma de cunha, com cerca de 60° de abertura. O gradiente radial do campo magnético é controlado por bobinas de ajuste, que permitem operação com cada partícula, em todos os intervalos de energia. A armadura do imã consiste de dois pólos e duas peças laterais, ajustadas com precisão, para manter uniformidade e alinhamento do campo magnético entre os pólos. Três conjuntos de bobinas harmônicas controlam o primeiro harmônico do campo, para uma ótima eficiência de extração. Os pólos do imã se fecham em duas partes, formando uma câmara de vácuo, que permite elevação da parte superior, dando acesso às regiões de criação e aceleração dos íons para manutenção.

A câmara de vácuo conta com dois sistemas de alto vácuo, composto por duas bombas de difusão, as quais atingem um vácuo final de 10^{-7} Torr, que é suficiente para ionização apenas do gás injetado, o qual é posteriormente acelerado, gerando o feixe de íons e também garantir o isolamento devido à alta tensão gerada no sistema de radiofrequência e no sistema de extração⁽²⁹⁾.

Os íons são gerados por uma fonte do tipo "penning", montada na posição radial e localizada no centro da câmara de aceleração do ciclotron. Ela utiliza catodos aquecidos pelos próprios íons (catodos quentes), eliminando, assim, a necessidade de um filamento e conta com a possibilidade de ajuste tridirecional, para eficiência na geração de íons. Estes íons gerados são acelerados por dois eletrodos em forma de "dês", de 90°, que estão conectados a um conjunto indutor

localizado no sistema de radiofrequência, o qual funciona como um circuito ressonante de meia-onda.

O feixe interno pode ser monitorado e otimizado em qualquer raio de aceleração, através de uma ponta de prova, dispositivo que é remotamente controlado, possibilitando, assim, medir a posição e a intensidade do feixe. Este dispositivo pode ser completamente retirado, permitindo que o feixe passe por um canal de extração⁽²⁹⁾.

Em um ciclotron clássico, os prótons são extraídos por um canal eletrostático (defletor). Ele é formado por um "septum" (lâmina) feitos com uma chapa de cobre muito fina, aterrada (0,3 a 0,7 mm) e um eletrodo negativo (barra), paralelo, localizado a uma distância de 3 mm, para produzir um alto campo eletrostático (150 kV/cm), necessário para extrair a última órbita das partículas (normalmente de largura 1 mm e separadas da órbita precedente por 1 mm). Mesmo com uso de técnicas de extração ressonantes, as últimas órbitas do feixe não são separadas e a folha de cobre intercepta uma parte significativa de feixe, apesar de sua espessura reduzida⁽¹⁸⁾. Devido à variedade de feixe que pode ser extraído com o modelo CV-28 o canal eletrostático foi projetado de modo a permitir um ajuste remoto entre a barra defletora e o "septum".

Após o feixe ser defletido de sua órbita máxima, ele passa por um canal magnético, sendo, então, enviado para o sistema de transporte de feixe. Este consiste, inicialmente, de uma linha de feixe principal, com um sistema de bobinas de centralização ("steering") e focalização (quadrupolares). Um imã distribuidor desvia o feixe para cada uma das sete linhas de feixe externo, a 0° , $\pm 20^\circ$, $\pm 40^\circ$, $\pm 60^\circ$ até atingir o alvo numa destas posições.

Em cada uma destas linhas está também instalado um sistema de bobinas quadrupolares, para focalização e um sistema de varredura, que permite uma maior uniformidade do feixe. O sistema de feixe externo atualmente instalado no ciclotron do IPEN, é composto de uma linha de feixe principal e duas linhas secundárias permitindo irradiações de alvos sólidos, líquidos e gasosos.

A figura 3.3 mostra uma vista esquemática do ciclotron: câmara de vácuo, linha de feixe principal, distribuidor magnético e linhas de feixe secundárias. Atualmente são acelerados prótons com energia de 24 MeV e correntes de feixe externo máxima de $30 \mu\text{A}$ no alvo, limitação devido ao canal eletrostático^(1,14,29).

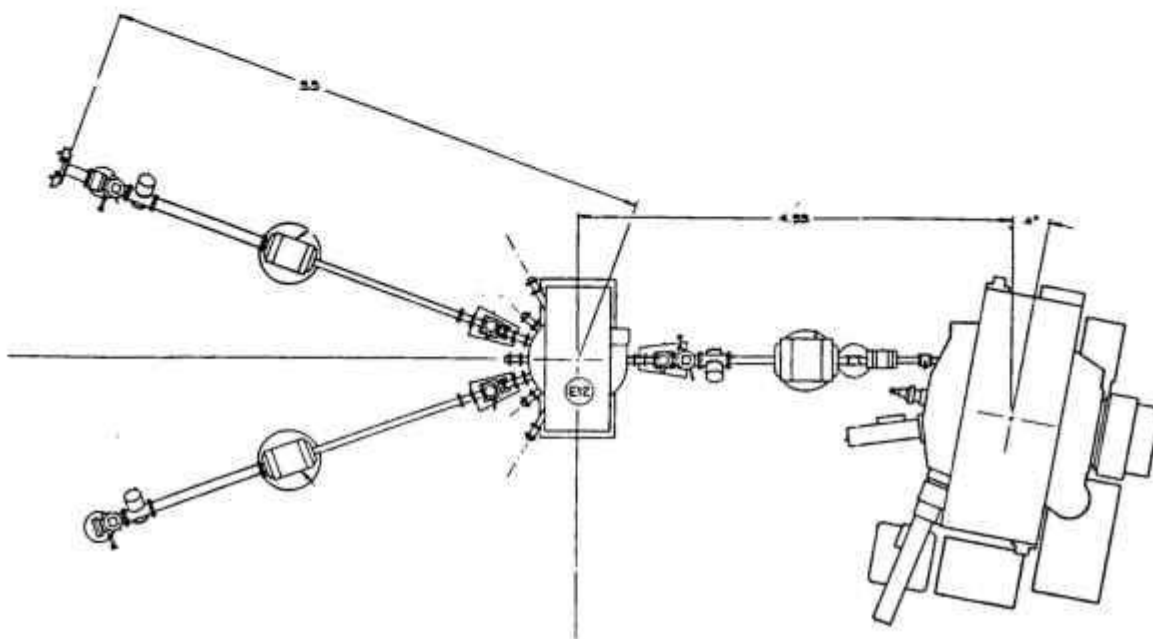


Figura 3.3 - Vista esquemática do ciclotron e o sistema de transporte de feixe.

3.2 DESCRIÇÃO DO SISTEMA DE IRRADIAÇÃO

3.2.1 SISTEMA ORIGINAL FORNECIDO PELA "THE CYCLOTRON CORPORATION" (TCC)

Com a aquisição do ciclotron, foi fornecido um sistema de irradiação com feixe interno. Neste projeto original, a operação completa para se obter um alvo irradiado seria composta por uma lógica seqüencial, somando etapa por etapa, cada uma delas possuindo sensores de posição, que permitiria que uma determinada etapa somente pudesse ser iniciada se a anterior tivesse sido completada. As figuras 3.4 e 3.5 mostram o sistema original da TCC.

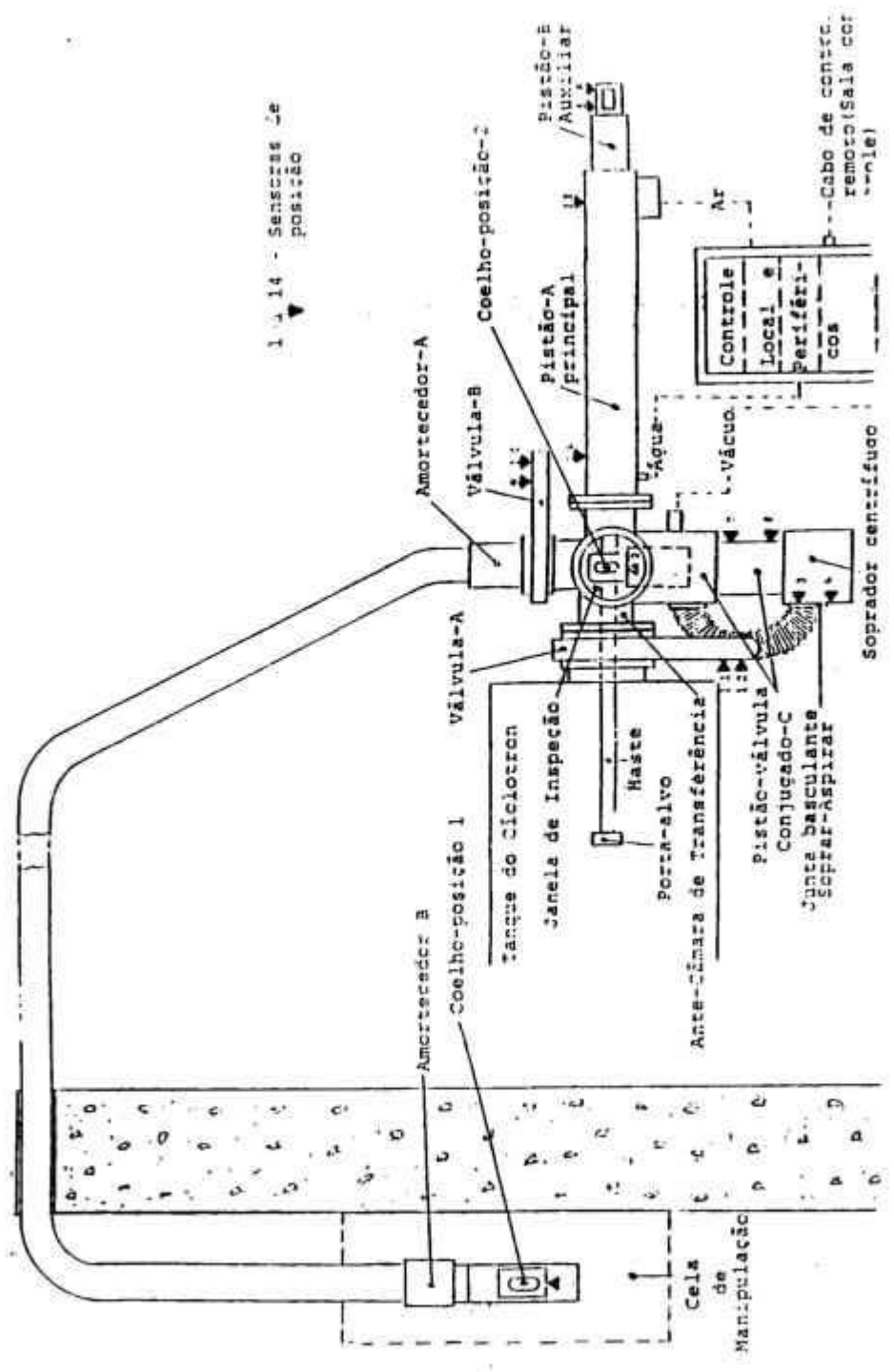


Figura 3.4 - Esquema simplificado do alvo interno original da TCC.

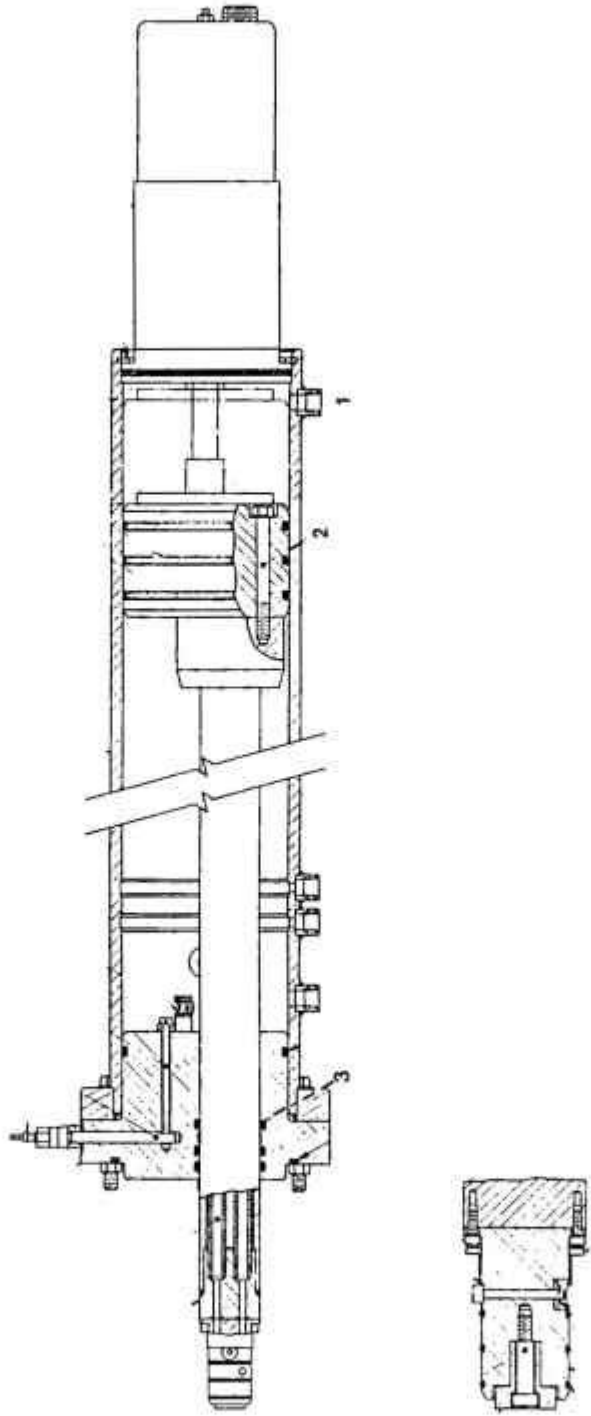


Figura 3.5 - Sistema original da TCC.

A parede de concreto com 1,2 m de espessura separa o laboratório de química quente (à esquerda) da caverna, onde está localizado o sistema de alvo interno no tanque principal do ciclotron (à direita).

Inicialmente o alvo seria fixado em um porta-alvo e encaixado em um "coelho". Este conjunto era colocado numa estação na cela de manipulação. (coelho-posição 1). Um soprador centrífugo transportava este conjunto até uma pré-câmara, através de um duto de 4" (101,6 mm) (coelho-posição 2). Um pistão auxiliar (B) encaixava a haste do pistão principal (A) no porta-alvo, estabelecendo-se as conexões de água de refrigeração do alvo, conforme pode ser visualizado na figura 3.5, completando-se a selagem da pré-câmara para iniciar o vácuo. Feito o pré-vácuo, o sistema era aberto para a câmara principal do ciclotron (através da válvula A), a qual já estava com alto vácuo, sendo então atingido o equilíbrio nos dois sistemas. Após isto, o pistão com o alvo seria avançado até a posição de irradiação. Para tal, o alvo (com o porta-alvo) sofria uma rotação de 90° em torno da haste do pistão principal, efetuado por meio de um guia mecânico. Uma vez completada a rotação, uma trava mecânica, composta por um pino situado na ponta da haste do pistão principal, encaixava numa canaleta dentro do porta-alvo. Esta trava garantia a diferença de pressão da água de refrigeração e do vácuo.

Uma vez terminada a irradiação, a retirada do alvo era feita em seqüência inversa: recuo da haste do pistão principal, desengate da haste do porta-alvo, envio do "coelho" mais porta-alvo para a cela de manipulação, para desmontagem do alvo. Nas duas extremidades do duto de um freio pneumático parava o "coelho" mais porta-alvo, amortecendo sua queda, já que a transferência era feita pneumaticamente e em alta velocidade.

A proposta original deste projeto é excelente, uma vez que irradiando-se dentro do ciclotron, elimina-se um dos pontos críticos em aceleradores de íons positivos, que é o sistema de deflexão. Com este, se perde praticamente a metade do feixe produzido, devido à sua geometria, onde existe um limite de corrente que pode ser extraído, principalmente em relação ao "septum" do defletor

no qual é dissipada uma potência muito alta em pequena área, que é indiretamente refrigerada. Nos melhores casos, somente 50 a 70% do feixe produzido pode ser extraído, 3 kW de potência de feixe é um limite prático para a maioria dos ciclotrons comuns de prótons. Isto é adequado para produção modesta de isótopos mas está muito longe de ser suficiente para fornecedores comerciais. A maioria deles desenvolveu, então, seus próprios sistemas e alvo interno permitindo a utilização de 150 μA a 200 μA em alvos fixos e mais que 500 μA nos melhores rotativos⁽¹⁸⁾.

Assim, com esta proposta de alvo interno, aproveita-se quase a totalidade de corrente interna produzida, conforme já citado na tabela 3.1. Entretanto, tal dispositivo não foi instalado e utilizado no ciclotron do IPEN-CNEN/SP devido à ocorrência de grandes falhas com equipamento idêntico em diversos países e que levaram estas instituições a modificarem o projeto original^(13,28).

Por estes motivos, o equipamento ficou armazenado (14 anos) e foi parcialmente desmontado, em função da retirada de diversos componentes, partes estas usadas na reposição de peças danificadas no ciclotron e/ou linhas externas, tais como: medidores de vácuo, válvulas eletropneumáticas, botões de comando, sinalizadores, relês, "microswitches", sistemas hidráulicos e de vácuo em geral.

Dentre as falhas no projeto original, três são de vital importância para o seu bom funcionamento. A primeira é o transporte do alvo, por um sistema pneumático, até a posição de irradiação. Isto pode ser melhor visualizado através da figura 3.5. Pode-se observar que, para iniciar o transporte do pistão principal no qual é fixo o alvo, injeta-se ar comprimido na posição 1. A pressão necessária para vencer a inércia provocada pelos "o-rings" nas posições 2 e 3 é muito maior que quando o pistão já está em movimento. Isto significa que, o movimento inicial do pistão torna-se completamente sem controle, o qual é deslocado com alta velocidade, podendo provocar danos na região central do ciclotron ("Dês", fonte de íons, vazamento de ar e água). O mesmo ocorre quando se inicia o retorno

após a irradiação. Testes iniciais realizados em bancada comprovaram que realmente tal sistema de transporte pneumático não era confiável.

Outro problema no projeto original, que é considerado muito grave, era que durante o retorno do alvo após a irradiação, durante a rotação inversa de 90° para a posição vertical, o porta-alvo saía de sua posição na ponta da pistão e caía, na saída do guia mecânico, pois a trava não atuava na posição vertical. Isto gerava vários transtornos, causando danos à máquina e exposição do pessoal técnico a altas doses de radiação durante a remoção do alvo.

O terceiro problema crítico no projeto original era a refrigeração, que demonstrou-se não ser eficiente, não podendo ser irradiado com correntes acima de $5 \mu\text{A}$.

Devido a esses fatores, que tornaram o sistema de alvo interno inoperante, fornecido pela "The Cyclotron Corporation" (TCC), houve necessidade de otimização, de modo a tornar este sistema confiável e reprodutivo, para que pudesse ser utilizado no ciclotron.

A lógica de controle era desconhecida e teve que ser literalmente decifrada, pois o fabricante, não forneceu desenhos com detalhes construtivos, mas apenas desenhos do conjunto, sem dimensões. Para os circuitos de comando dispunha-se apenas de diagramas de blocos com suas interconexões para a instalação.

3.2.2 SISTEMA OTIMIZADO E MODIFICADO

Tendo em mente as vantagens que podem ser obtidas com a utilização de irradiações com feixe interno, o objetivo do presente trabalho foi modificar e otimizar o sistema de alvo interno existente, de tal modo que o alvo pudesse ser fixado firmemente e mantido com segurança no sistema de transporte para a posição de irradiação e também modificar o sistema de controle do alvo.

Com isto, pretendeu-se alcançar uma operação confiável e constante de toda a seqüência lógica do sistema, desde a colocação do alvo, vácuo, transporte para a posição de irradiação, refrigeração, recuo do alvo e envio para a cela de desmontagem.

Conforme citado anteriormente, o projeto como um todo era viável e deveria ser aproveitado, pois trazia benefícios na utilização do ciclotron para a produção de radioisótopos, irradiando-se com correntes de feixe mais altas, significando menores tempos de utilização do equipamento, com conseqüente diminuição do seu desgaste, menor consumo de energia elétrica e podendo atender maior demanda no mercado de radioisótopos.

A idéia básica da seqüência operacional não necessariamente deveria ser descartada, isto é: trazer o alvo da cela de manipulação com um soprador centrífugo até a posição de engate, bem como retorná-lo à cela quente após ser irradiado. Porém, o sistema somente poderia ser utilizado se os três pontos críticos fossem completamente solucionados e estes três pontos críticos não estavam ligados na parte da seqüência do soprador centrífugo e sim no transporte do pistão principal até a posição de irradiação. Tendo em vista minimizar os recursos financeiros que seriam investidos na modificação, procuraram-se soluções, de maneira a se aproveitar o máximo possível do disponível na época.

Os três pontos críticos estavam concentrados na fase compreendida entre o engate do pistão principal no porta-alvo, transporte para a posição de irradiação, irradiação em si, recuo e desengate do porta-alvo. Desta parte do sistema original, aproveitou-se simplesmente a "camisa" e a haste do pistão principal, que pode ser visualizada na figura 3.5, mostrada anteriormente.

Assim, para se atingir a operacionalidade confiável e para que pudessem ser efetuadas as primeiras irradiações, foi necessário executar diversas etapas distintas, mas complementares, que serão citadas a seguir:

- a) estudo dos conceitos básicos de projeto do sistema;

b) montagem e aprimoramento de um painel de controle, com operação manual e automática. No modo manual, cada operação exige comando para partida. Este só será aceito caso a operação precedente tenha sido completada. Já na operação automática, o processo é totalmente completado, bastando o comando inicial. Para isto, foram instalados 16 sensores de posição 2 a mais que o original;

c) montagem da parte mecânica do sistema. O interfaceamento do controle foi gradativamente sendo implementado bem como os periféricos de água, ar comprimido e vácuo;

d) modificação no sistema de transporte do alvo para a posição de irradiação, de pneumático para acionamento com motor, conforme pode ser visto na figura 3.6. Para tal, utilizou-se apenas a "camisa" e a haste do pistão principal, sendo o transporte realizado através de um conjunto composto por fuso e transmissão a correia com motor. Convém frisar que, com isto, eliminou-se o pistão secundário, sendo o engate feito por este próprio conjunto fuso e motor. Isto garantiu um posicionamento preciso durante todo o transporte, proporcionando partidas suaves, podendo ser variada a velocidade de transporte de acordo com o passe do fuso ou a transmissão escolhida. A haste do pistão foi utilizada, pois ela possui diversas funções: transporte do alvo até a posição de irradiação, em sua parte interna estão instalados os dutos que levam a água de refrigeração do alvo, possui acabamento fino de superfície e flanges convenientes para vácuo e é isolada eletricamente para medida de corrente de feixe. No controle do motor foram utilizados relés de memória para que pudesse ser evitado qualquer problema de erro operacional e também qualquer problema devido à queda de energia durante a irradiação. Isto permitiu que se pudesse recuperar a mesma posição na seqüência lógica de operação, sem a necessidade de se reiniciar todo o processo;

e) montagem de um rack contendo um painel de comando, tubulação para vácuo, refrigeração do alvo, purga, bem como as válvulas solenóides e de retenção. O esquema de controle é mostrado na figura 3.7. Pode-se notar que foi instalada uma válvula solenóide normalmente aberta, na linha de refrigeração de água, cuja função é aliviar a pressão de ar no momento do engate e no momento

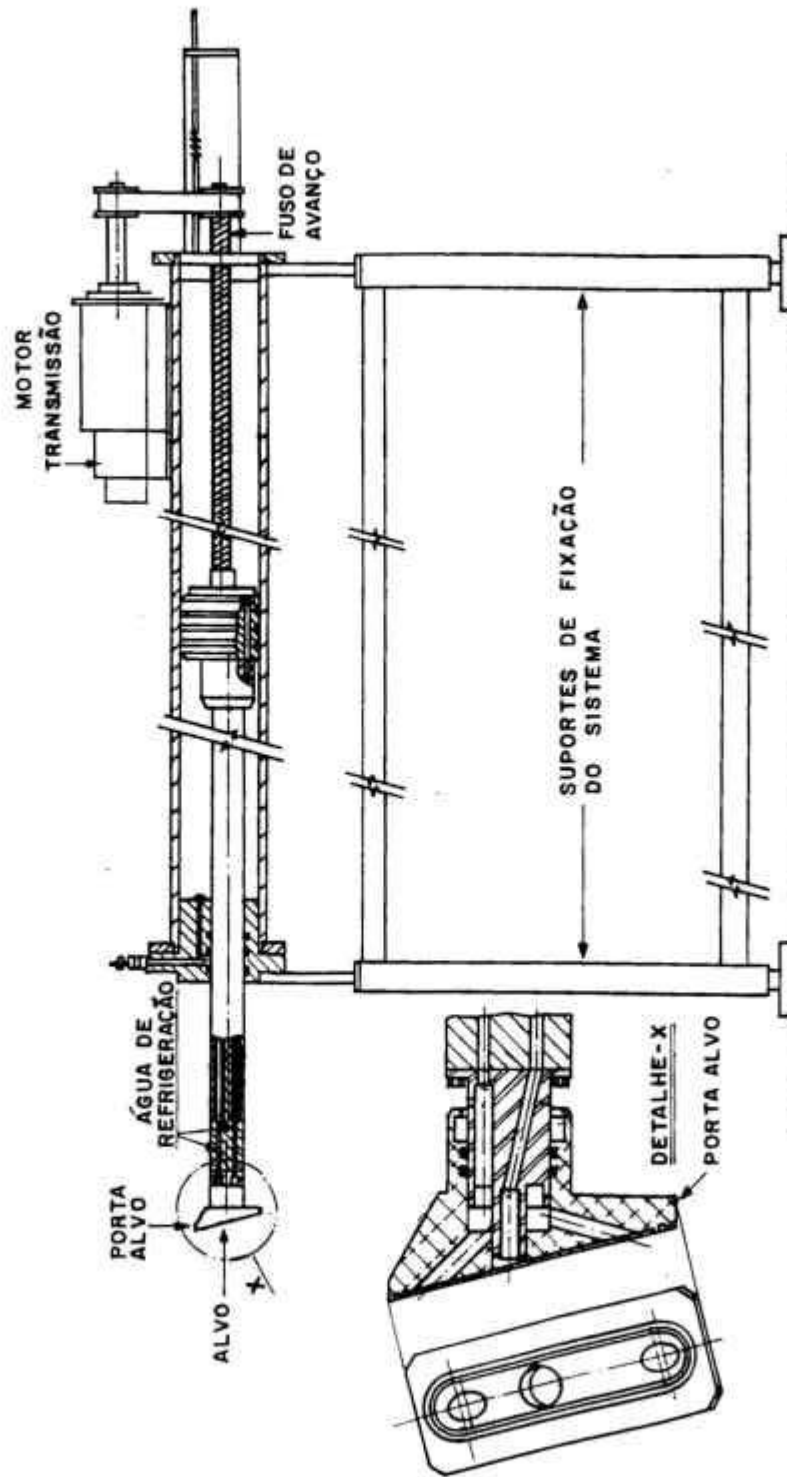


Figura 3.6 - Sistema de transporte do alvo interno modificado.

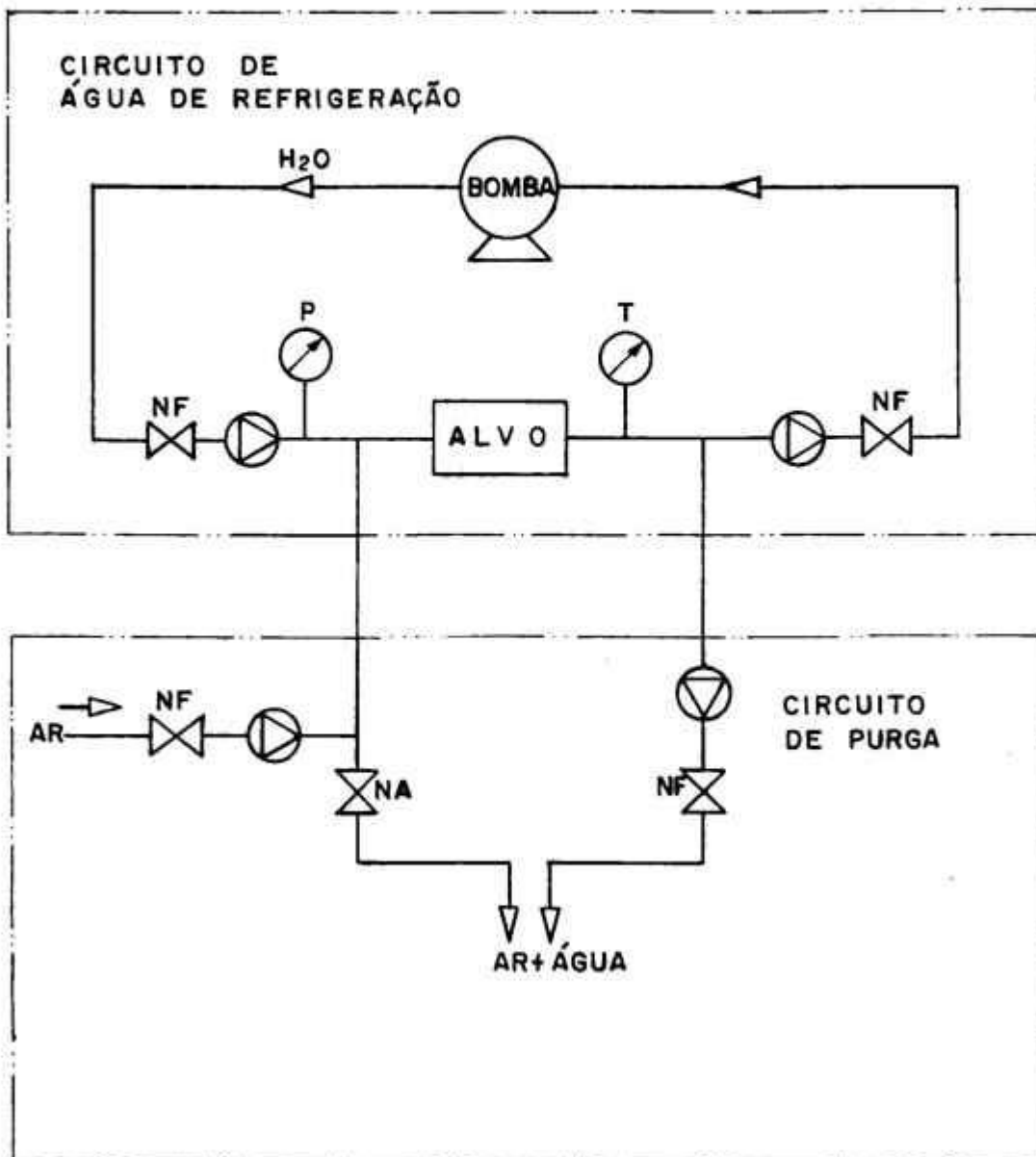


Figura 3.7 - Controle de refrigeração, vácuo e purga.

da purga de água de refrigeração, ela servia como válvula de escape caso o tempo de purga não tivesse sido suficiente;

f) mudança na capacidade de refrigeração do alvo. No sistema original, a água passava por um rebaixo feito no porta-alvo, cruzando toda a extensão do alvo. No sistema modificado, a água entra pela parte central do alvo e sai pelas extremidades, conforme já utilizado no sistema modificado por Lambrecht et. al.⁽¹³⁾, Arábia Saudita, mostrado na figura 3.8.

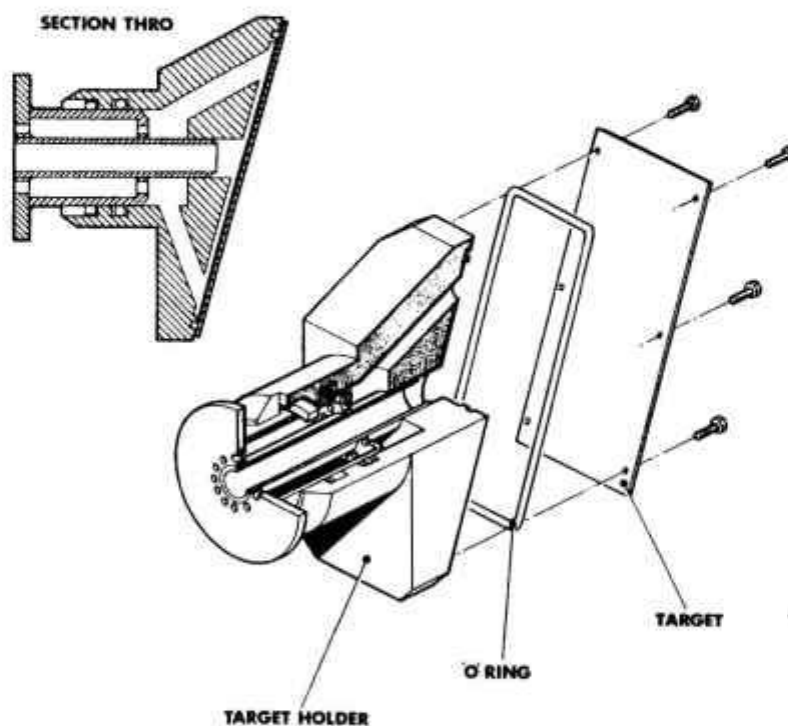


Figura 3.8 - Sistema de alvo interno modificado por Lambrecht et. al.⁽¹³⁾, Árabia Saudita.

g) colocação de termopares para monitoração de temperatura. Foram utilizados termopares de NiCr-Ni, na entrada e saída da água de refrigeração, possibilitando a medida da variação de temperatura da água em função de corrente de feixe utilizada;

h) desenvolvimento de um sistema de trava do porta-alvo, para suportar a pressão de água de refrigeração, alto vácuo e a correta posição de irradiação. Um dos principais problemas consistia na queda do alvo no tanque principal ou na pré-câmara: no sistema original, já com alto vácuo do ciclotron, o pistão principal com o porta-alvo era avançado, onde se produzia, através de um guia mecânico, uma rotação de 90° no porta-alvo, ao redor de sua haste, garantindo o travamento deste para suportar a pressão da água de refrigeração, alto vácuo e a correta posição de irradiação. Após esta, como o recuo era feito em vácuo, quando ocorria a rotação de 90° , normalmente o alvo saía de sua posição, tornando seu uso inadequado, uma vez que o recuo somente era possível colocando-se todo o tanque do ciclotron na pressão atmosférica. A mudança neste mecanismo de trava foi de fundamental importância para a utilização deste sistema. Como solução, foi proposta uma modificação em toda a lógica do circuito de controle elétrico e mecânico, onde tanto no avanço como no recuo do pistão principal, a rotação do porta-alvo seria efetuada não em vácuo e sim à pressão atmosférica. Assim, primeiro girava-se o porta-alvo em aproximadamente 45° , ainda na pressão atmosférica, garantindo-se o travamento. Em seguida era feito pré-vácuo e aberto para o alto vácuo do tanque principal do ciclotron. Somente então completava-se a rotação de 90° e o avanço até a posição de irradiação. O recuo era feito de maneira análoga. Para tal, tornou-se necessária uma mudança na lógica do circuito, com a introdução de "fins de cursos" adicionais, que pudessem proporcionar estes "atrasos" de engates, de abertura de válvulas do tanque principal para a entrada de ar na pré-câmara, onde é feita a rotação final do porta-alvo. Isto é, modificação em todos os intertravamentos de controle do mesmo.

A figura 3.9 mostra o sistema de alvo interno montado no tanque principal do ciclotron, onde pode ser visto o rack com o painel de controle, a "camisa" que engloba o fuso e a haste com a refrigeração do alvo. Acima da "camisa", pode ser visto o motor para o transporte do alvo. A "camisa" é fixada na pré-câmara onde estão o duto de transporte para a cela de manipulação (acima) e o soprador centrífugo (abaixo). Na pré-câmara é realizado o engate da haste com o porta-alvo.

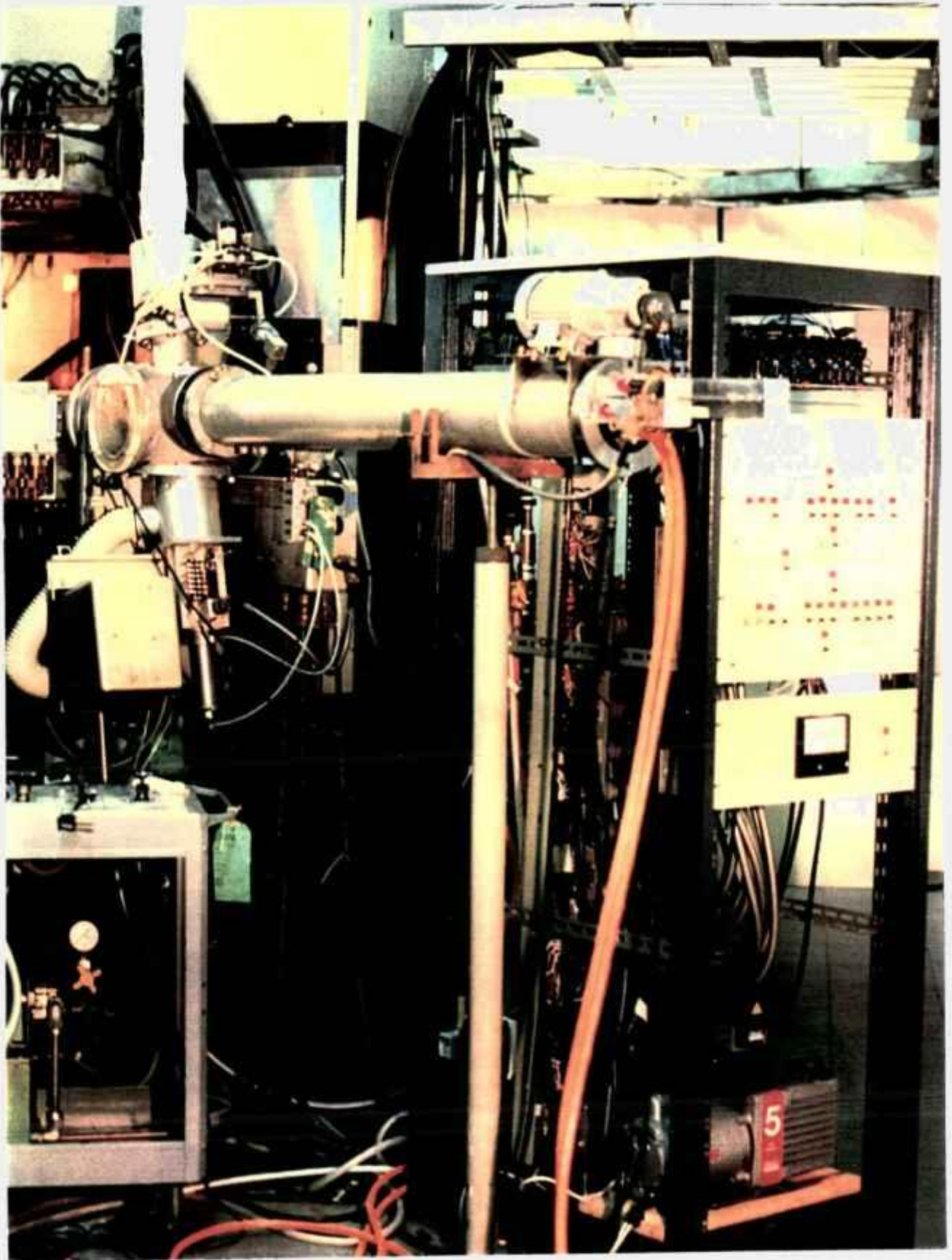


Figura 3.9 - Sistema do alvo interno montado.

3.2.3 SEQÜÊNCIA DE OPERAÇÃO DO SISTEMA OTIMIZADO

Com todas as modificações feitas no projeto original, principalmente em relação às três básicas, a seqüência de operação do sistema otimizado é descrita a seguir e pode ser melhor visualizada pelo diagrama de blocos na figura 3.10 e pelo esquema simplificado na figura 3.11.

1) Inicialmente o "coelho" com o porta-alvo e alvo é inserido num alojamento na extremidade do duto de transporte, dentro da cela de manipulação, no laboratório de química quente, situado ao lado da caverna do ciclotron, conforme a figura 3.12. O sensor 1 é acionado pelo peso do "coelho" com o porta-alvo, fornecendo uma das condicionantes para o início de operação. As demais condicionantes são:

- haste do pistão principal completamente recuada
- pistão válvula-conjugado C avançado
- válvula A fechada
- válvula B aberta
- amortecedor A livre
- amortecedor B livre
- refrigeração do alvo bloqueada
- pré-vácuo desligado
- sensor de vácuo - atmosfera

2) Dada a partida, o processo se inicia conduzindo a junta basculante para a posição de aspirar (se necessário, dependendo da situação dos sensores 1, 2, 3, ou 4).

3) O aspirador é acionado, o "coelho" é succionado e, ao liberar o sensor 1, o amortecedor A é acionado para reter o "coelho" após a travessia do duto. O coelho é retido pelo amortecedor e após um tempo programado (~10 s) é liberado, caindo por gravidade num alojamento no topo do conjugado pistão-válvula C, acionando o sensor 2. O aspirador é desligado. Na queda, o coelho sofre uma rotação, de forma a ficar corretamente orientado para a introdução da haste do pistão principal.

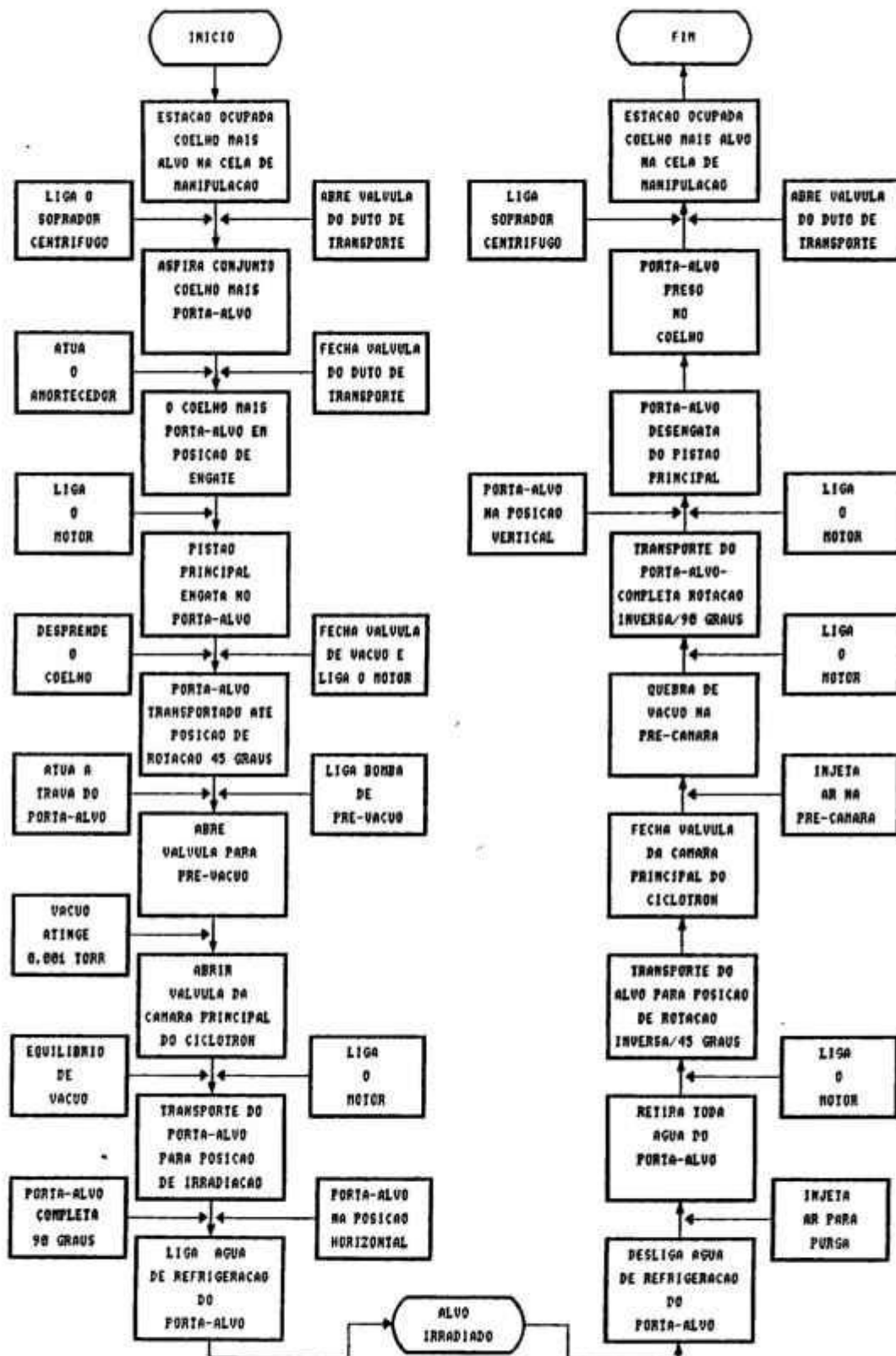


Figura 3.10 - Diagrama de blocos da seqüência de operação.

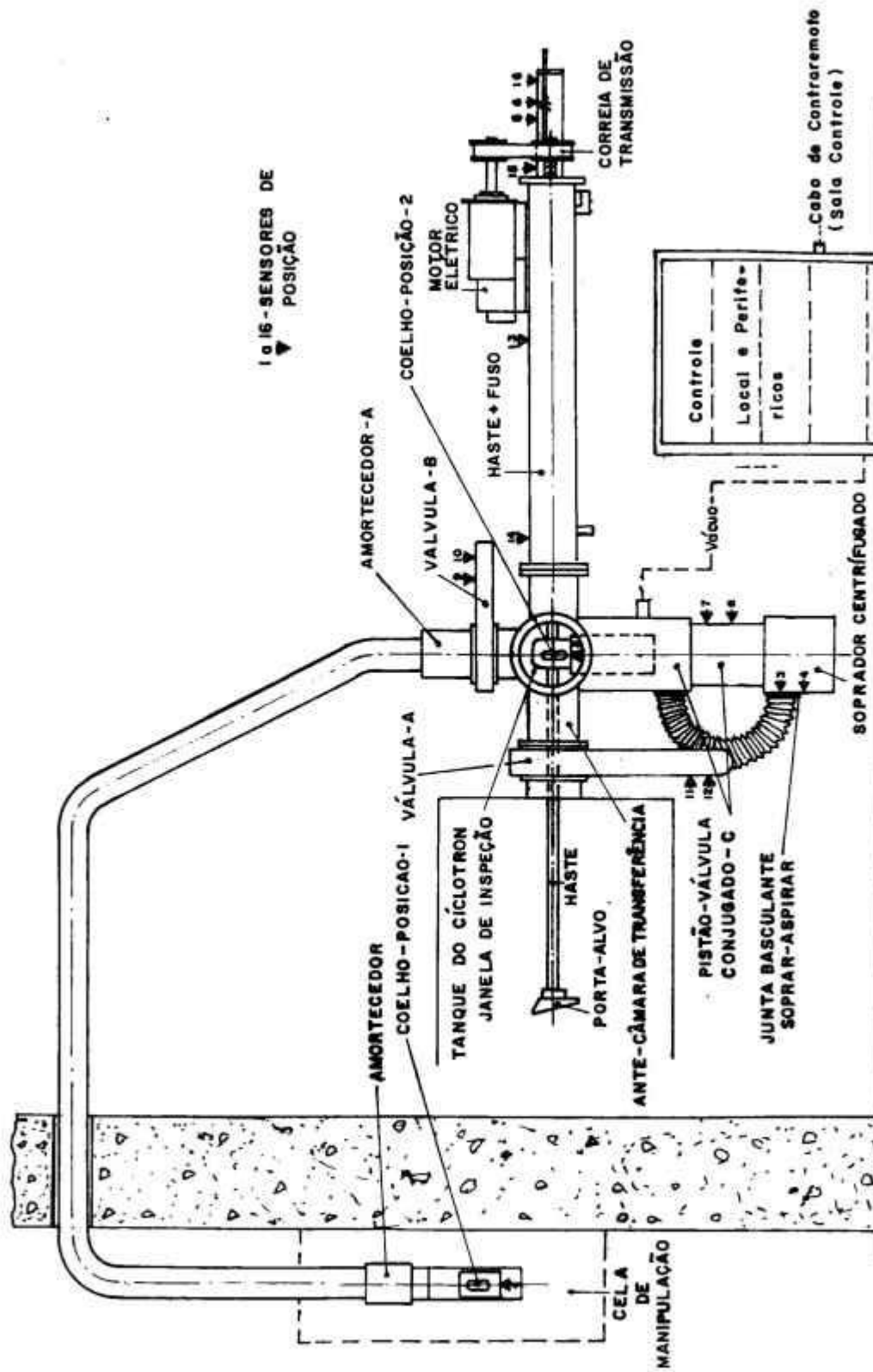


Figura 3.11 - Esquema simplificado do sistema de alvo interno modificado.



Figura 3.12 - "Coelho" com porta-alvo na cela de manipulação.

4) a seguir o motor é acionado até encaixar a haste do pistão principal no porta-alvo, conforme figura 3.13. Neste encaixe se estabelecem as conexões de água entre haste e porta-alvo. O sensor 5 é ativado indicando o engate.

5) O conjugado pistão - válvula C é recuado, fechando-se a comunicação com o aspirador e acionando duas garras que prendem o "coelho" e destravam o dispositivo de retenção do porta-alvo no "coelho". O sensor 8 é ativado, indicando porta-alvo livre e "coelho" preso.

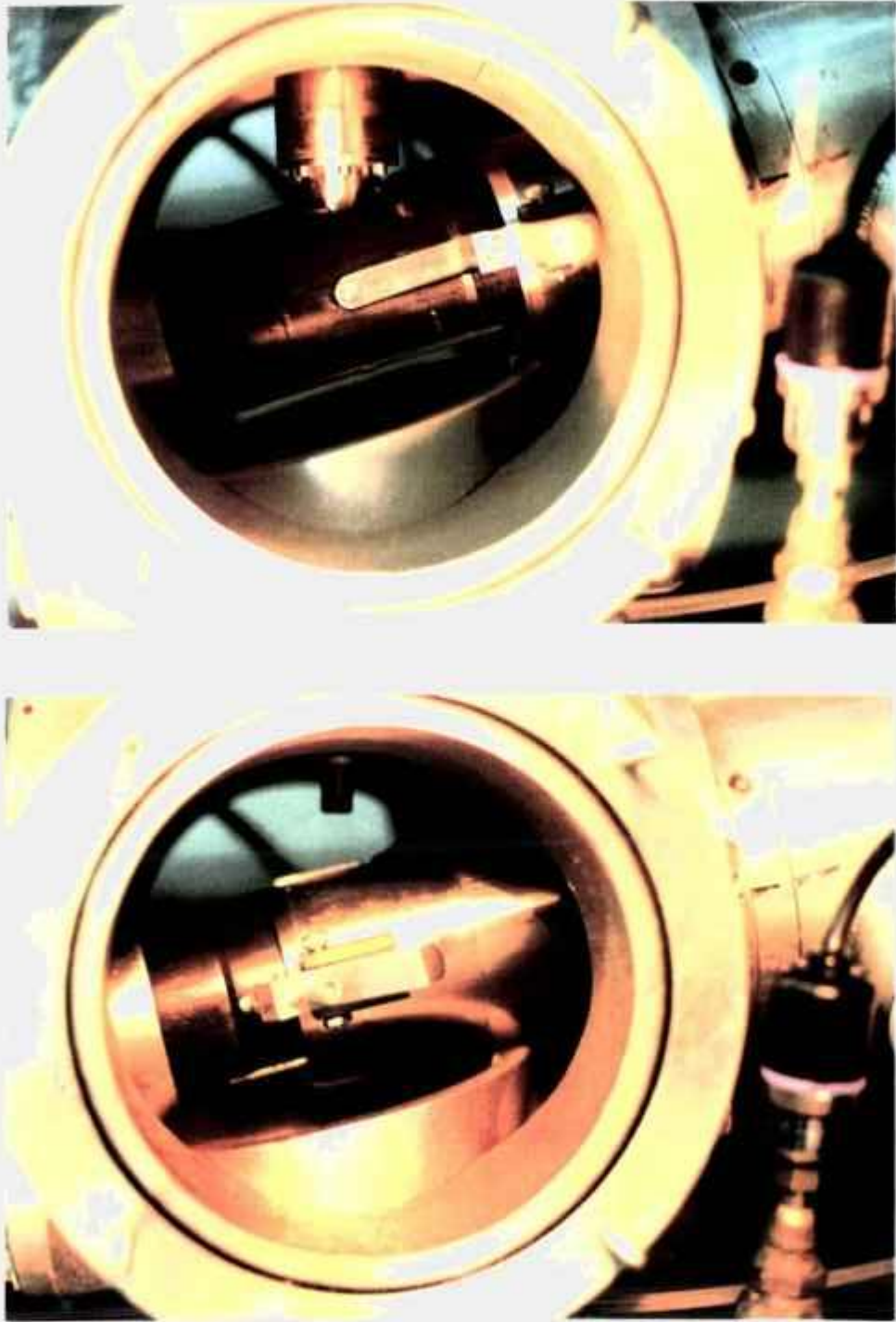


Figura 3.13 - Engate da haste do pistão principal no porta-alvo.

6) A válvula B é fechada, completando-se a selagem da pré-câmara de vácuo, ativando o sensor 9.

7) O motor novamente é acionado e a haste do pistão principal é avançada, conduzindo apenas o porta-alvo para uma posição intermediária onde, neste ponto, o porta-alvo trava. Neste movimento, um guia mecânico (canaleta) produz uma rotação de 45° no porta-alvo, ao redor da haste, acionando o sensor 15, assegurando, assim, o travamento do mesmo, conforme pode ser visto na figura 3.14. Neste momento o sistema está preparado para ser evacuado.

8) A bomba de pré-vácuo é acionada.

9) Quando o sensor de vácuo acusar 10^{-3} Torr, torna-se possível a abertura da válvula A, e também a refrigeração poderá ser ligada e desligada, apenas para verificar se não há vazamento de água.

10) A válvula A é aberta condicionando-se vácuo, permitindo assim o transporte do alvo para dentro do tanque principal do ciclotron via sensor 12.

11) A seguir, pela terceira vez o motor é acionado e o pistão principal é avançado, completando-se a rotação de 90° no porta-alvo ao redor da haste, guiado através de um trilho, assegurando-se a orientação correta para irradiação, conforme figura 3.15.

12) Alcançada esta posição de irradiação, liga-se a água de refrigeração. O sensor 14 é ativado.

O alvo está pronto para ser irradiado e a medida da corrente de feixe é feita através do contato elétrico com a haste do pistão principal.

Na figura 3.16 é mostrado o alvo na posição de irradiação. A figura mostra o alvo em relação aos "Dês", fonte de íons, defletor eletrostático e a ponta de prova, sendo melhor visualizado na figura 3.17.

A extração tem sequência inversa, precedida de uma operação de purga da água de refrigeração, feita através da injeção de ar comprimido no circuito de água de refrigeração do alvo. Nesta fase, atuam os sensores de posição 6,7,10,11,13,16.

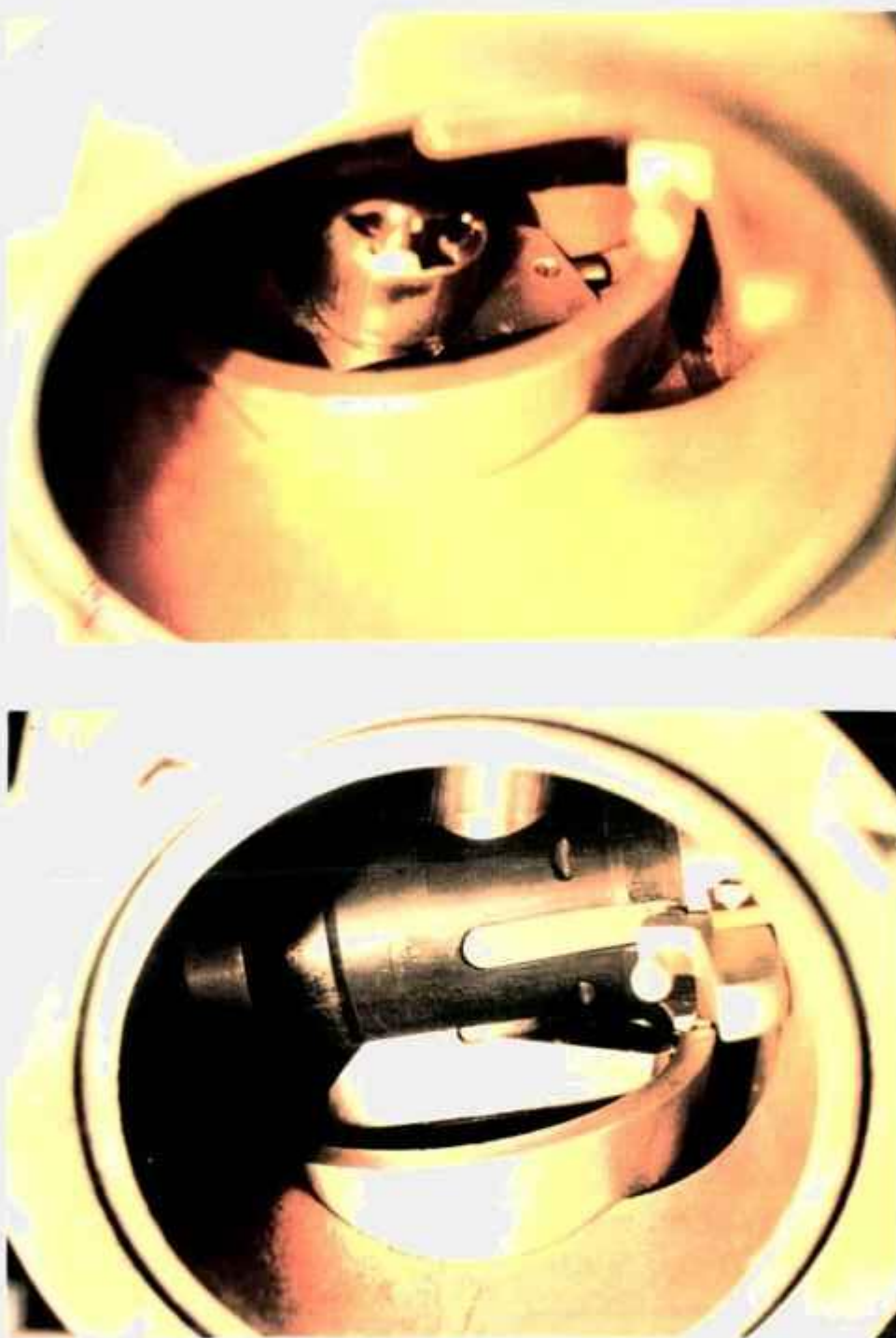


Figura 3.14 - Transporte do porta-alvo até a posição intermediária (rotação de 45°).

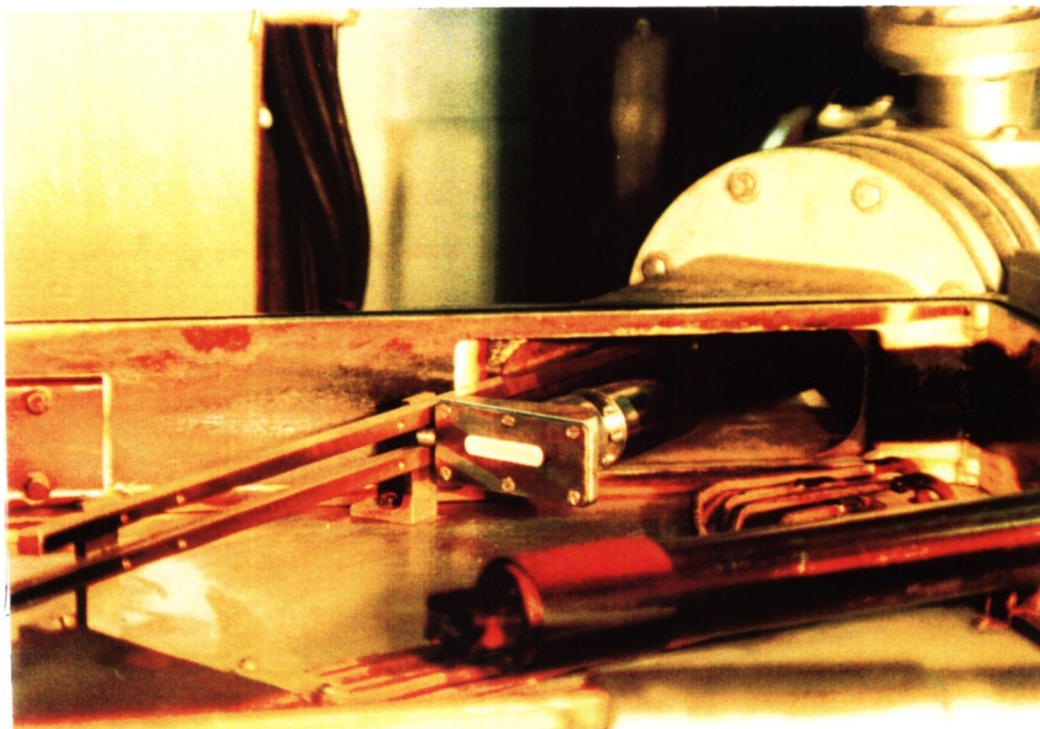


Figura 3.15 - Porta-alvo sendo guiado através de um trilho



Figura 3.16 - Alvo interno na posição de irradiação.

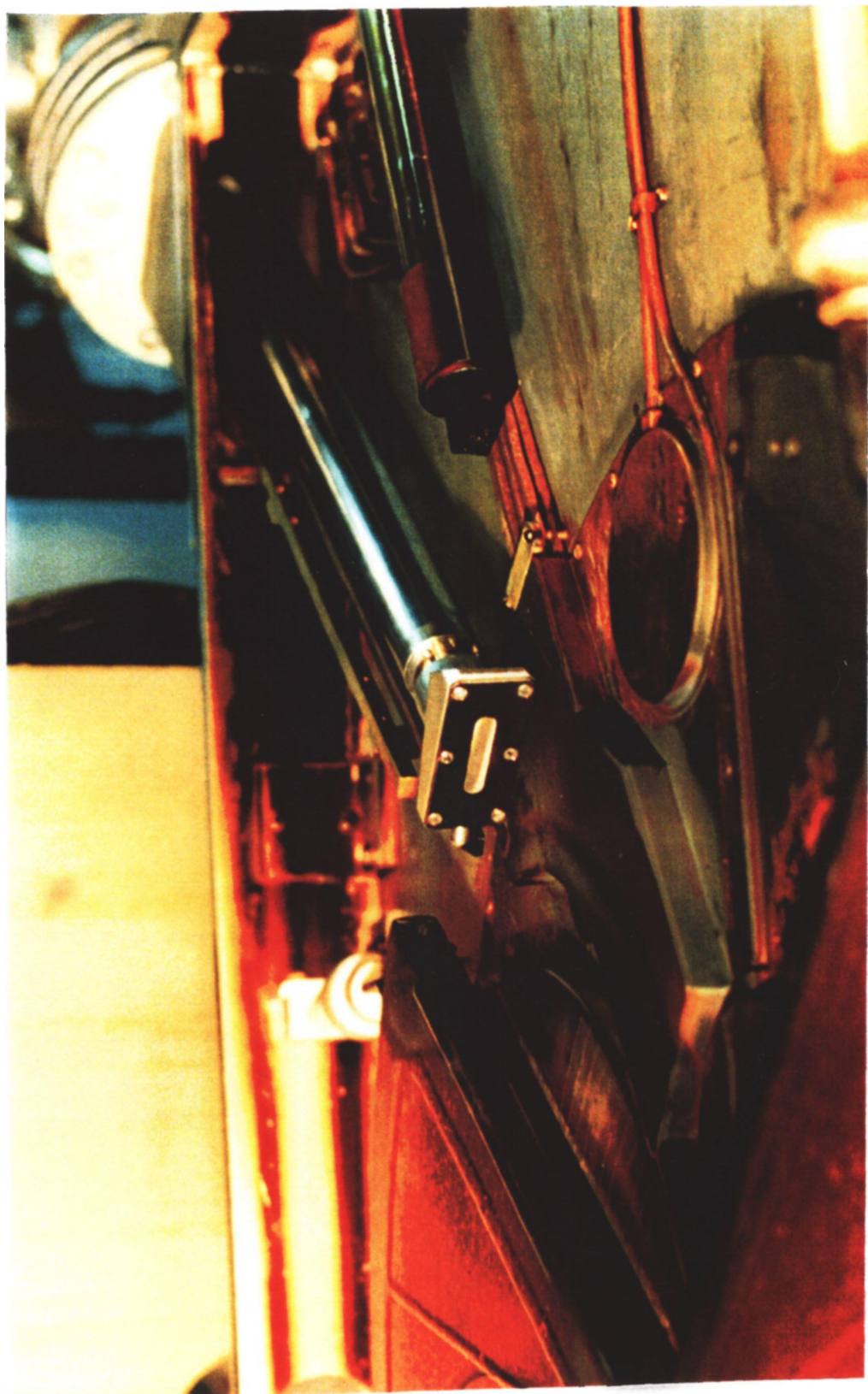


Figura 3.17 - Vista detalhada do alvo na posição de irradiação.

3.3 IRRADIAÇÕES EFETUADAS

Após o término da instalação do sistema otimizado e dos testes de operacionalidade do mesmo, iniciaram-se os primeiros testes com correntes de feixe no alvo.

Para análise do perfil do feixe incidente foram utilizadas chapas de cobre de 104 x 43 x 3 mm, nas quais foram feitos canais de 1,7 mm de profundidade, melhorando a capacidade de refrigeração, gerando turbulência da água e garantindo a resistência mecânica do material suporte, no caso cobre. Esta chapa, na sua parte frontal, recebia uma camada de tinta, cuja finalidade era de “marcar” o feixe incidente. Testes de perfil também foram feitos, envolvendo a placa de cobre com uma lâmina fina de alumínio, que possuía a mesma finalidade da camada tinta.

Para simular as condições de utilização real em um regime de produção, foi eletrodepositado Zinco em chapas idênticas de cobre niqueladas. A camada de Níquel foi utilizada para que posteriormente fosse feita separação do material alvo da placa suporte. Para a eletrodeposição foi utilizada uma massa de aproximadamente 500 mg de Zinco natural. As primeiras foram feitas em uma área de 5,2 cm² na placa suporte e, depois de otimizado o feixe, com o intuito de simular produções, em área de 10,4 cm², o que levava a espessuras eletrodepositadas de 95-100 mg/cm² e 45-50 mg/cm², respectivamente. Durante a irradiações foi acompanhada a temperatura da água na saída de refrigeração do porta-alvo em função da corrente de feixe utilizada. Após a irradiação foi verificada a eventual perda do material alvo e medido o rendimento de produção do radioisótopo obtido, para comparação com os resultados já conhecidos em irradiações efetuadas com Zinco, em linhas de feixe externo. Esta é a razão pelo qual se utilizou Zinco como material alvo.

Para o cálculo do rendimento, o alvo foi dissolvido em 30 ml de ácido clorídrico concentrado e diluído em 250 ml de água destilada. Alíquotas de 1ml foram retiradas e medidas em um detetor de Ge(HP).

As irradiações foram feitas com prótons de 24 MeV de energia e correntes de feixe de até 80 μ A.

A utilização da haste e a “camisa” do pistão principal permitiu que o alvo permanecesse na mesma posição que o projetado inicialmente pela TCC, sendo o ângulo de incidência do feixe no alvo também o original, de 1,45°.

CAPÍTULO 4

RESULTADOS E DISCUSSÕES

4.1 MODIFICAÇÕES NO SISTEMA ORIGINAL

Antes da utilização do sistema para irradiações de alvos, o primeiro resultado positivo que deveria ser esperado era em relação à operacionalidade e confiabilidade do sistema e isto somente seria possível se os três pontos críticos do projeto original fossem solucionados. A solução dada a cada um deles merece ser destacada, uma vez que se tornou o objetivo básico do trabalho e serão discutidas a seguir.

4.1.1 SISTEMA DE TRANSPORTE DO ALVO PARA A POSIÇÃO DE IRRADIAÇÃO

A modificação no sistema de transporte do alvo para a posição de irradiação, de pneumático para acionamento com motor, permitiu um ajuste fino, controlado e confiável, eliminando-se os pistões principal e secundário, além de válvulas eletro-pneumáticas que comandavam os mesmos. Assim, tanto o percurso para o engate da haste com o porta-alvo, bem como o transporte até a posição de irradiação, passaram a ser feitos por um único motor. O retorno até o desengate também.

A transmissão do motor para o fuso, bem como o passo do fuso, foram escolhidos de maneira a ter um engate e um transporte suave do porta-alvo.

A velocidade de transporte com o sistema fuso + transmissão foi de $6 \cdot 10^{-3}$ m/s aproximadamente, sendo o percurso da posição de engate até a posição de irradiação de 1,42 m.

Durante o percurso de engate-transporte, irradiação e retorno, por seis vezes o motor deve ser ligado e desligado dependendo da etapa que está sendo executada. Para o controle deste motor, foram utilizados relés de memória, que têm como princípio de funcionamento o de um relé contator normal.

O relé contator normal é composto por uma bobina, um eletroímã e um bloco contendo os contatos fixos e móveis. Quando a bobina do eletroímã está energizada, o relé fecha-se, estabelecendo, por intermédio dos pólos, o circuito entre a rede de alimentação e o receptor. Quando a bobina é desligada da tensão da rede, o circuito magnético é desmagnetizado e o contator abre-se sob o efeito das molas de pressão dos pólos e da mola de retorno da armadura móvel. No caso do relé de memória, ele contém duas bobinas, um eletroímã e um bloco de contatos. Quando a bobina do relé de memória é colocada sob tensão, o eletroímã fica preso mecanicamente, juntamente com os seus 4 contatos. Ele volta à posição de repouso, quando a segunda bobina é colocada sob tensão⁽⁶⁾, tendo as seguintes vantagens:

- a) não há desmagnetização em caso de queda de tensão, sendo que o estado do aparelho é controlado pela bobina que por último for desligada;
- b) é insensível à falta de tensão.

No caso, a aplicação de relés de memória no sistema de alvo interno, sua configuração com duas bobinas permitiu que, uma vez dado o sinal pelo sensor de posição na seqüência de operação, a primeira retém os contatos mecanicamente, que mantém esta sua posição retida independente de estar energizado ou não. Ela só se destravará a partir do momento que receber o sinal da segunda bobina, que só é acionada quando recebe o sinal do sensor de posição subsequente, que indica que a etapa foi completada, desligando o motor.

A utilização de relés de memória permitiu que fosse evitado qualquer problema de erro operacional ou qualquer problema devido à queda de energia durante a operação, recuperando a mesma posição na seqüência lógica de operação, sem a necessidade de se reiniciar todo o processo como ocorria no sistema original da TCC.

4.1.2 REFRIGERAÇÃO DO ALVO

Em testes preliminares realizados com o sistema original da TCC, para correntes maiores que $5 \mu\text{A}$ havia perda de material alvo percebida ainda durante a irradiação, através de oscilações no vácuo e faiscamentos no sistema de radio-frequência. O fluxo de água de refrigeração era de aproximadamente 6 L/min com uma pressão de 7 kgf/cm^2 . Com a modificação no porta-alvo, cuja entrada de água se fez pelo centro e saída pelas extremidades, rebaixamento no porta-alvo de 2 mm e as ranhuras na placa suporte, onde o alvo é eletrodepositado, o fluxo de água aumentou para 14 L/min, mantendo-se a mesma pressão de 7 kgf/cm^2 . Esta geometria permitiu o aumento da corrente de feixe para $80 \mu\text{A}$, sem perda de material alvo.

4.1.3 SISTEMA DE TRAVA

O sistema de trava era um dos principais problemas do projeto original, pois o alvo caía no momento de saída do guia mecânico, quando da rotação inversa de 90° , feita ainda em alto vácuo, sendo que, nesta posição, a trava não atuava: o porta-alvo ficava somente preso na haste por dois "o'rings".

Além disto, havia queda abrupta de vácuo, com vazamento de água de retorno da refrigeração, pela quebra da estanqueidade das válvulas solenóides e de retenção. A retirada do alvo exigia a abertura da câmara de vácuo do cíclotron, expondo o pessoal técnico a altas doses de radiação. Para solucionar este problema e aproveitar o sistema de trava mecânica original, optou-se por alterar, não a trava em si, mas a lógica de controle, de tal maneira que a rotação de 90° fosse efetuada em duas etapas: uma na pressão atmosférica e outra em vácuo. Assim, ainda na pressão atmosférica, é efetuada uma rotação de aproximadamente 45° , onde, neste ponto, a trava mecânica já está atuando. Somente com o sistema travado é feito pré-vácuo, testa-se a água, abre-se a válvula do tanque do cíclotron e avança-se o porta-alvo até a posição de

irradiação. A retirada é feita de maneira análoga: recua-se o porta-alvo até esta posição intermediária, com uma rotação inversa de 45° , fecha-se a válvula do tanque do ciclotron e coloca-se a pré-câmara, onde está o porta-alvo, na pressão atmosférica. Sem nenhuma diferença de pressão atuando no porta-alvo é completada a rotação para a posição vertical, puxando-o até o “coelho”.

Para a mudança na lógica de controle, de modo a se efetuar a rotação de 90° em duas etapas, foi necessária a colocação de um sensor de posição entre a posição de engate e a abertura da válvula alvo interno-ciclotron. Como dentro da pré-câmara não havia espaço disponível para a introdução de qualquer tipo de sensor, o mesmo foi instalado na flange externa que apóia a haste do pistão, consistindo de um cursor, que representasse a distância percorrida pela haste. Assim, com a colocação deste sensor intermediário, na rotação de 45° , que indicava o final desta etapa, a seqüência lógica de operação tornou-se mais segura e confiável, pois:

a) evita qualquer dano ao ciclotron, já que as operações, que no sistema original eram de risco, são feitas com a válvula do tanque principal fechada;

b) com esta modificação, tais riscos não existem, uma vez que, tanto o início do vácuo quanto o retorno à pressão atmosférica, são feitas com a trava mecânica atuante;

c) quando o porta alvo está livre, isto é, na posição vertical onde a trava mecânica não atua, a pré-câmara sempre estará em pressão atmosférica, sem diferença de pressão do tipo vácuo, água de refrigeração ou de ar comprimido de purga;

d) esta parada intermediária em 45° , com o sistema já travado e com pré-vácuo, possibilitou fazer teste de água de refrigeração e a purga da água, antes de abrir a válvula do tanque principal. No sistema, estas duas operações só eram permitidas com o alvo em posição de irradiação, qualquer eventual vazamento ocorreria na região central do ciclotron, o que implicaria em quebrar o vácuo, abrir o tanque, aspirar esta água e fazer novamente vácuo, para a retirada de toda umidade do sistema. Isto poderia causar atraso ou cancelamento de outras produções.

4.2 IRRADIAÇÕES

As figuras 4.1.a e 4.1.b mostram os primeiros ajustes no perfil de feixe, nos quais as irradiações eram efetuadas com baixas correntes de feixe, no máximo $1 \mu\text{A}$. Na figura 4.1.a pode ser visualizado o perfil pela volatilização da tinta colocada na parte frontal do alvo, no local de incidência do feixe. O mesmo pode ser visto na figura 4.1.b, onde o local de incidência do feixe corta a lâmina de alumínio presa na parte frontal do alvo.

Esta forma de visualização do local de incidência do feixe, na placa de cobre “marcada”, foi usada como referência para os ajustes posteriores no perfil de feixe, através das bobinas de correção dos campos magnéticos principal e harmônicos. O feixe ideal otimizado era um compromisso em sua posição de marcação na chapa de cobre e a intensidade da corrente incidente, onde abrangesse a maior área do material que seria eletrodepositado como alvo. Foram necessária 15 irradiações para otimização do perfil de feixe com correntes baixas. Uma vez o feixe otimizado, placas de cobre niqueladas foram utilizadas para ajustes de perfil de feixe, com correntes cada vez maiores, sendo a marcação na chapa notada pela escurecimento do níquel no local de incidência do feixe.

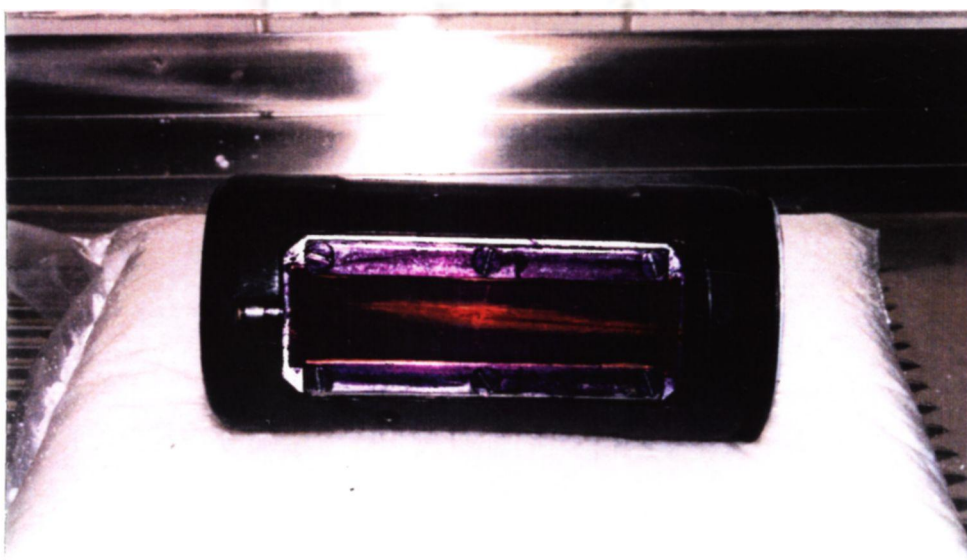


Figura 4.1.a - Perfil do feixe dado através da volatilização da tinta.



Figura 4.1.b - Perfil do feixe dado através do corte na lâmina de alumínio.

4.2.1 TEMPERATURA DA ÁGUA DE REFRIGERAÇÃO NA SAÍDA DO PORTA-ALVO

Para refrigeração do alvo foi utilizada água desmineralizada do circuito primário, que refrigera o cíclotron, a qual se mantém em torno de 13°C. A figura 4.2 mostra a temperatura da água de refrigeração na saída do porta-alvo (°C) em função da corrente de feixe (μA). Neste caso, foi utilizada chapa de cobre niquelada com alvo de Zinco eletrodepositado (~480 mg). A corrente de feixe foi aumentada de 5 em 5 μA , onde o valor na ordenada corresponde à temperatura com valor já estabilizado. Nota-se que para um aumento de 5 μA existe um aumento de 1°C na temperatura da água na saída.

Quando se manteve a corrente de feixe em um determinado valor, após grandes variações, por exemplo de 60 para 40 μA , rapidamente a temperatura se fixava no valor correspondente, sendo reprodutivo, tanto no aumento como no decréscimo do feixe.

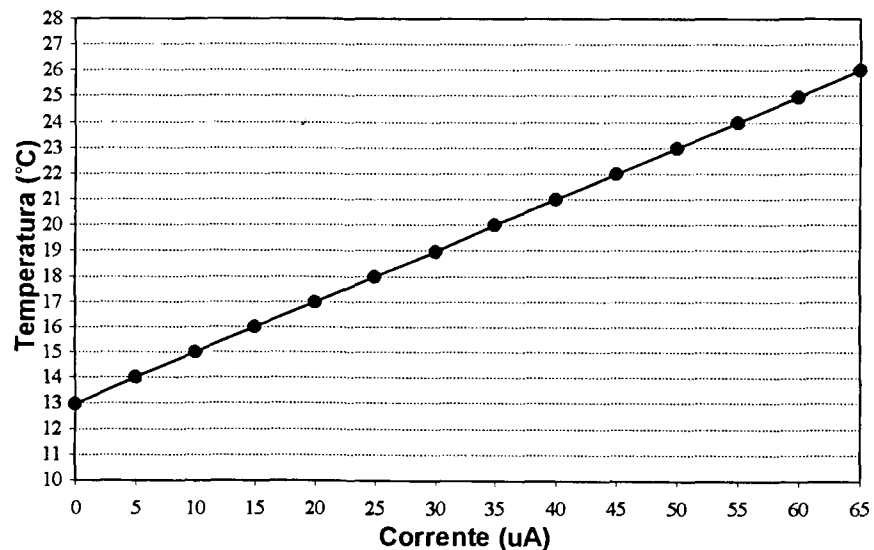


Figura 4.2 - Temperatura da água de saída da refrigeração ($^{\circ}\text{C}$) em função da corrente de feixe (μA).

Embora esta medida não represente a temperatura do alvo, ela é um excelente indicativo, tornando-se um parâmetro de importância durante a

irradiação, pois ela detecta qualquer anomalia na refrigeração do alvo. Medidas da temperatura do alvo podem ser obtidas com a utilização de pirômetro ótico⁽¹¹⁾. Uma medida direta da temperatura da superfície durante a irradiação com feixe externo, através de termopares, é descrita por Nortier et. al.⁽¹⁶⁾. Para tal, a placa suporte do alvo, de prata, foi revestida com um isolante, sendo descobertos os pontos onde a temperatura seria medida. Nestes pontos, uma camada de Níquel fornecia as junções térmicas Ag/Ni, que foram utilizadas para medir diretamente a temperatura da superfície. No caso do alvo interno, este arranjo é mais complicado devido ao acesso à região central do cíclotron. Por outro lado, a medida da temperatura de saída da água do alvo pode ser medida durante uma produção, sendo de grande utilidade prática.

4.2.2 IRRADIAÇÕES EM ALVO DE ZINCO NATURAL

Uma vez estabelecidos os parâmetros do cíclotron para obtenção de um ótimo perfil de feixe, irradiações em alvos eletrodepositados com Zinco natural foram feitas com o intuito de verificar a máxima corrente de feixe que pudesse ser utilizada no sistema de alvo interno, de maneira a não perder material alvo por volatilização e verificar o rendimento do radioisótopo obtido, comparado a valores já conhecidos em irradiações com feixe externo.

Assim, foram feitas irradiações de 1 hora com correntes de feixe a partir de 20 μA , sendo medida a massa dos alvos após a irradiação ($m_{\text{alvo}} = 450$ a 500 mg).

Nestas irradiações, para correntes de até 80 μA , a perda de massa do alvo foi desprezível, mostrando que a modificação no aumento de refrigeração do alvo, citada em 4.1.2. , foi eficiente.

Assim, mantendo-se a corrente entre 60 e 70 μA , que correspondem a mais do dobro da utilizada em feixe externo, irradiações mais longas foram efetuadas

com o intuito de verificar a perda de massa e o rendimento de ^{67}Ga obtido a partir de alvo de Zinco natural. A tabela 4.1 mostra os parâmetros destas irradiações.

Tabela 4.1 - Irradiações feitas em alvos de Zinco natural com correntes mantidas constantes, como em produções rotineiras.

Tempo (min)	Corrente média (μA)	Dose (μAh)
75	72	90
120	61,5	123
230	67,7	262

Também, após estas irradiações a perda de massa dos alvos foi desprezível, não detectada em balança digital com precisão de miligramas. Isto demonstra que, realmente, a modificação na refrigeração do alvo foi eficiente para as intensidades de correntes utilizadas. Além disto, a temperatura de saída da água do alvo permaneceu constante, após a estabilização, durante toda a irradiação. Por exemplo, na irradiação mais significativa, 230 min, a temperatura inicial era de 12°C e permaneceu constante em uma temperatura de 24°C em toda a irradiação.

Na figura 4.2 pode ser vista a carga acumulada em função do tempo desta irradiação, medida em intervalos de 30 min. Nota-se que, a dose aumenta linearmente com o tempo, demonstrando que a corrente não sofreu oscilações durante a irradiação. Isto mostra que, a utilização do sistema de feixe interno, que possibilita irradiações com correntes de feixe maiores, possui uma estabilidade muito boa, o que não ocorre com o externo, que depende da estabilidade do defletor.

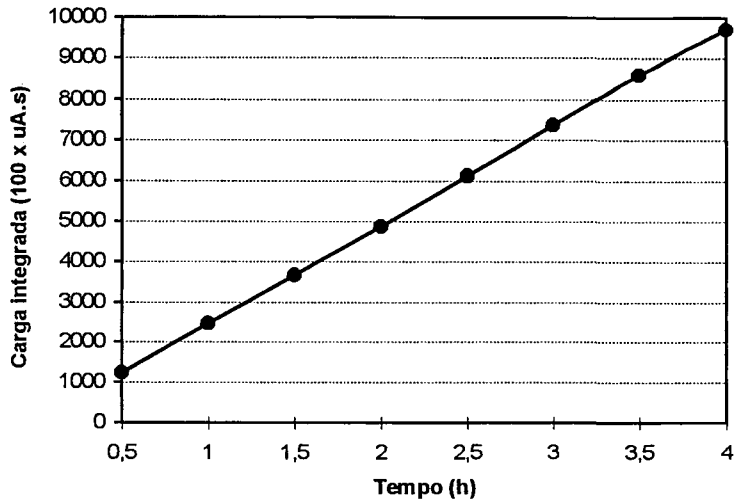


Figura 4.2 - Carga acumulada em função do tempo de irradiação.

Além disto, o rendimento obtido do ^{67}Ga , no final da irradiação foi de 21,2 MBq/ μAh (0,57 mCi/ μAh), valor este bastante satisfatório se comparado com o obtido no ciclotron CV-28, com a utilização de feixe externo com correntes de 10 μA por uma hora, de 23 MBq/ μAh (0,62 mCi/ μAh)⁽²⁶⁾.

É possível que correntes de feixes maiores possam ser utilizadas, procurando-se otimizar o método de eletrodeposição, conforme citado por Pirart⁽¹⁹⁾, não foi dedicado esforços neste sentido, pois não era o objetivo do presente trabalho e a idéia inicial era comparar com as irradiações com feixe externo, que utiliza os mesmos métodos de eletrodeposição.

No caso de alvos sólidos, em ciclotrons de íons positivos, como o do IPEN-CNEN/SP, devido ao problema do sistema de deflexão, o alvo interno é a saída mais razoável para a utilização de altas correntes de feixe. Uma das desvantagens deste sistema, além da não desfocalização, é o nível de ativação do ciclotron e da caverna, devido ao alto fluxo de nêutrons rápidos gerados, com subsequente alta dose de radiação a que pode ser exposto o pessoal para manutenção da região central.

Uma outra alternativa seria a utilização de um ciclotron que acelera íons negativos, H^- , com funcionamento similar de uma máquina clássica padrão de íons positivos (magneto principal, R.F, etc), diferenciando no sistema de extração, que pode-se obter uma eficiência próxima de 100%, por meio de uma folha de carbono fina. Neste caso, pode-se obter correntes de feixe externo acima de $200 \mu A$, inclusive com a possibilidade de extração de 2 feixes simultaneamente. Porém, nestas máquinas há a necessidade de se trabalhar com um vácuo bem maior, pois o fluxo do gás hidrogênio para operar uma fonte H^- é de 3 a 5 vezes maior do que o fluxo de uma fonte de prótons. O gás produzido no centro do ciclotron é muito difícil de ser bombeado. Como resultado, tem-se uma alta produção de feixe neutro, H^0 , através da colisão do H^- com o gás residual, pela perda de um elétron. Este feixe neutro se choca com a parede da câmara de aceleração, gerando danos de radiação significativos no acelerador. Tal fato é tão ruim como a utilização de alvo interno em um ciclotron de íons positivos⁽¹⁰⁾.

CAPÍTULO 5

CONCLUSÕES

Dos resultados obtidos, pode-se concluir que as modificações no projeto original do alvo interno, como, por exemplo, posicionamento com motor, aumento na capacidade de refrigeração, desenvolvimento no sistema de trava, alterações na lógica de comando, etc, tornaram o sistema mais versátil e muito mais confiável que o sistema de alvo interno de acionamento pneumático fornecido pela TCC. Um painel de controle adicional, localizado na sala de controle do ciclotron, permite operação do sistema completamente automática e remota, uma vez que o alvo possui uma taxa de exposição alta: em irradiações com 80 μA durante quatro horas, em Zinco natural, esta ultrapassou 1000 R/h.

A temperatura de saída da água de refrigeração do alvo aumentou linearmente com a corrente do feixe de prótons, aumentando de 13 °C para 25 °C com uma corrente de 60 μA . Para correntes de feixe de 80 μA , em irradiações de 4 horas em Zinco natural a perda de massa do alvo foi desprezível, mostrando que o aumento de refrigeração do alvo foi eficiente.

O rendimento obtido de ^{67}Ga , a partir de alvos de Zn natural, no final da irradiação foi de 21,2 MBq/ μAh (0,57 mCi/ μAh), valor bastante satisfatório se comparado ao obtido em irradiações com feixe externo, utilizando-se correntes de 10 μA por uma hora, de 23 MBq/ μAh (0,62 mCi/ μAh)⁽²⁶⁾.

Assim, considerando que as irradiações com feixe externo eram efetuadas com correntes de feixe de 25 μA a 30 μA , durante um período de aproximadamente 18 horas para a produção do ^{67}Ga , a utilização do sistema de alvo interno contribuiria na redução deste tempo de irradiação para mais que a

metade do utilizado, refletindo diretamente na diminuição do desgaste do acelerador e/ou sua utilização para outras finalidades.

Embora a utilização de aceleradores de íons negativos seja uma tendência atual na produção comercial de radioisótopos, o sistema de alvo interno torna-se uma solução conveniente para irradiações com altas correntes de feixe, no cíclotron CV-28 do IPEN-CNEN/SP, além de ser um cíclotron que pode acelerar outras partículas além de prótons.

Porém, no caso da utilização do cíclotron CV-28 para a irradiação de alvos sólidos, o sistema de alvo interno é uma solução conveniente para a utilização de altas correntes de feixe. Além disto, o cíclotron CV-28 pode acelerar outras partículas (dêuterons, $^3\text{He}^{++}$ e alfas).

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ARAUJO, S.G.; SCIANI, V.; SAMPA, M. H. O.; LIMA, W.; RELA, P. R. Cíclotron do IPEN-CNEN/SP - atividades recentes. In: III ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, Agosto 7-11, 1995, Águas de Lindóia. *Proceedings...* Águas de Lindóia:, ABEN, 1995. p. 859 - 863.
2. BLESSING, G. ; QAIM, S. M. An improved internal Cu₃As-alloy cyclotron target for the production of ⁷⁵Br and ⁷⁷Br and separation of the by-product ⁶⁷Ga from the matrix activity. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* , v.35, p. 927-931, 1984.
3. BLESSING, G.; WEINREICH, R.; QAIM S. M. STÖCKLIN, G. Production of ⁷⁵Br via the ⁷⁵As(³He,3n)⁷⁵Br and ⁷⁵As(α, 2n)⁷⁷Br reactions using Cu₃AS-alloy as a high-current target material. *Appl. Radiat. Isot.* , v.33, p.333-339, 1982
4. BLESSING, G ; BRÄUTIGAM, W. ; BÖGE, H. G. ; GAD, N. ; SCHOLTEN, B. ; QAIM, S. M. Internal irradiation system for excitation function measurement via the stacked-foil technique. *Appl. Radiat. Isot.* , v.46, p. 955-960, 1995.
5. BOOTHE, T. E. ; MCLEOD, T. F. ; PLITNIKAS, M. ; KINNEY, D. ; TAVANO, E. ; FEIJOO, Y. ; SMITH, P. ; SZELECSÉNYI, F. Commercial and PET radioisotope manufacturing with a medical cyclotron. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B79* , p. 926-928, 1993.
6. CATÁLOGO TÉCNICO TELEMECANIQUE. *Características de contadores*. São Paulo, S.P.: Schneider Eletric Brasil S/A, 1996.
7. CLAYTON, C.G. Some coments on the development of radiation and radioisotope measurement applications in industry. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, v.34, n.12, p.917-934, 1990.

8. DAHL, J. R. ; TILBURY R.S . The use of compact, multi-particle cyclotron for the production of ^{52}Fe , ^{67}Ga , ^{111}In and ^{123}I for medical purposes. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.* , v. 23, p. 431-437, 1972.
9. DMITRIEV, S. N.; GULBEKYAN, G. G. ; OGANESSIAN YU. TS. Present status and prospects of production of radioisotopes with high radiochemical purity on the FLNR accelerators. FIFTH INTERNATIONAL WORKSHOP ON TARGETRY AND TARGET CHEMISTRY, september 19-23, 1993, Upton. *Proceedings...* Upton: BNL, 1994. p. 365-370.
10. JONGEN, Y. ; COHILIS, P. Use of accelerators for radioisotope production. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NON- ENERGETIC APPLICATIONS OF NUCLEAR SCIENCE, June 1-3, 1995, Brussels *Proceedings...* Brussels: BNS, 1995.
11. KRASNOV, N. N.; SEVAŠTYANOV, YU. G.; KONYAKIN, N. A.; RAZBASH, A. A.; OGNEV, A. A. ; PONOMAREV A. A. Radionuclide production on cyclotron of Institute of Physics and Power Engineering. In: IV TH INTERNATIONAL WORKSHOP ON TARGETRY AND TARGET CHEMISTRY, september, 9-12, 1991, Switzerland. *Proceedings ...* Switzerland: Regin Weinreich, 1992. p. 54-56.
12. KRAUSS, J. D.; CARVER, K. R. *Eletromagnetismo*. Rio Janeiro, R.J.: Guanabara Dois S. A., 1978.
13. LAMBRECHT, R.M.; SAJJAD, M.; SYED, R. H.; MEYER, W. Target preparation and recovery of enriched isotopes for medical radionuclide production. *Nucl. Inst. Meth. in Phys. Res.*, A282, p.296-300, 1989.
14. LUCKI, G. ; ZANCHETTA, A. A. GOUVEIA, S. ; KLEIN, H. Isochronous Variable Energy Cyclotron of IPEN-CNEN/SP - Installation, uses and perspectives. In: IV JAPAN - BRAZIL SYMPOSIUM ON SCIENCE AND TECHNOLOGY, VOL. IV - APPLICATION OF RADIATION AND

- RADIOISOTOPES, 1984, São Paulo. *Proceedings...* São Paulo: Academia de Ciências do Estado de São Paulo - SP, 1984. p. 146-151.
15. MEIJS, W.E.; HERSCHEID, J.D.M.; HAISMA, H.J.; VAN LEUFFEN, P.J.; MOOY, R.; PINEDO, H.M. Purification of ^{89}Zr using a Hydroxamate column. FIFTH INTERNATIONAL WORKSHOP ON TARGETRY AND TARGET CHEMISTRY, september 19-23, 1993, Upton. *Proceedings...* Upton: BNL, 1994. p. 232 -233.
16. NORTIER, F.M., STEVENSON, N.R., GELBART, W.Z. Investigation of the thermal performance of solid targets for radioisotope production. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, A355, p.236-241, 1995.
17. OSSO JÚNIOR, J.A. *^{77}Br Isotope Production for Medical Use*. Manchester: 1986. Thesis (Doctor) - Philosophy, Faculty of Science, University of Manchester.
18. PIRART, C.; Technologies relevant to commercial radioisotopes production. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON NON - ENERGETIC APPLICATIONS OF NUCLEAR SCIENCE- BRUSSELS, June 1-3, 1995, *Proceedings...* Brussels: BNS, 1995.
19. PIRART, G., BOL, J.L., LANNOYE, G., RENWART, D. Development of a high intensity internal target at the IRE cyclotron. *Rev. IRE Tijdschrift*, v.12, n.3, p.2-6, 1988.
20. QAIM, S. M. Production of Radioisotopes Using Accelerators. In: THE 2ND INTERNATIONAL SYMPOSIUM ON ADVANCED NUCLEAR ENERGY RESEARCH - EVOLUTION BY ACCELERATORS, january 24-26, 1990 Mito. *Proceedings...* Tokyo: Japan Atomic Energy Institute, 1990. p. 98-107, (INIS-MF-12714).

21. QAIM, S. M. ; STÖCKLIN, G. ; Production of some medically important short-lived neutron-deficient radioisotopes of halogenes. *Radiochim. Acta*, v.34, p.25-40, 1983.
22. QAIM, S.M. Target development for medical radioisotope production at a cyclotron *Nucl. Instr. Meth in Phys. Res.*, v. 41, n.10 -11, p.289-295, 1989.
23. SAJJAD, M. ; LAMBRECHT, R. M. ; Cyclotron targetry for medical radioisotope production. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, B40/41, p.1100-1104, 1989.
24. SAJJAD, M. ; LAMBRECHT, R. M. ; Cyclotron production of medical radionuclides. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, B79, p. 911-915, 1993.
25. SANTOS, L. L. M. ; *Desenvolvimento de Sistema de Irradiação de Água Natural para a Produção de ^{18}F no Cíclotron do IPEN*. São Paulo: 1994. Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
26. SANTOS, E. E.; *Estudos da Separação de Ga e Zn, por meio de Resinas Trocadoras e de Adsorção de Íons. Obtenção de ^{67}Ga para Uso em Medicina Nuclear*. São Paulo: 1994 Dissertação (Mestrado) - Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.
27. SCHOLTEN, B.; KOVÁCS, F.; TÁRKÁNYI, F.; QAIM, S. M.; Excitation functions of $^{124}\text{Te}(p, xn)^{124,123}\text{I}$ reactions from 6 to 31 Mev with special reference to the production of ^{124}I at a small cyclotron. *Int. J. Appl. Rad. Isot.*, v.46, n.4, p.255-259, 1995.
28. STELLMACHER, W. ; KOGLER, W. ; CREMER, H. ; BOLTEN, W. ; BLESSING, G. An automatic target system for high current irradiations in the internal beam of a compact cyclotron. *J. Labelled Compd. Radiophar.*, v. XIX, p. 11-12, 1982.

29. THE CYCLOTRON CORPORATION. *Instruction and Service Manual for the Cyclotron Corporation's - Model CV-28 Cyclotron - Ser. NO. 604*. US Pat. (TCC Ins-26), nov. 12, 1976.
30. VERESCHCHAGIN, Yu. I.; ZARGRYADSKIY, V. A.; PRUSAKOV, V. N. Cyclotron ^{82}Sr production for medical applications. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.*, v.A334, p246-248, 1993.
31. WORKSHOP ON TARGETRY AND TARGET CHEMISTRY. 1., October 4-7, 1985. *Proceedings...* Heidelberg: Deutsches Krebsforschungszentrum, 1985.
32. WORKSHOP ON TARGETRY AND TARGET CHEMISTRY. 2, September 22-25, 1987. *Proceedings...* Heidelberg: Deutsches Krebsforschungszentrum 1987.
33. WORKSHOP ON TARGETRY AND TARGET CHEMISTRY. 4, September 9-12, 1991. *Proceedings...* Villigen: Regin Weinreich, 1991.