Universidade Estadual de Campinas Instituto de Física "Gleb Wataghin"

Bárbara Smilgys

Confecção e calibração de filmes finos de boro para a medida da taxa da reação ¹⁰B(n,α)⁷Li na terapia por captura de nêutrons pelo boro

Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Física "Gleb Wataghin" da Universidade Estadual de Campinas como requisito para a obtenção do título de Mestre em Física.

Prof. Dr. Sandro Guedes de Oliveira

Este exemplar corresponde à versão final da dissertação defendida pela aluna Bárbara Smilgys e orientada pelo Prof. Dr. Sandro Guedes de Oliveira

Jandis guede,

FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA POR VALKÍRIA SUCCI VICENTE – CRB8/5398 - BIBLIOTECA DO IFGW UNICAMP

Smilgys, Bárbara, 1986-

Sm44c Confecção e calibração de filmes finos de boro para medida da taxa de reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ na terapia por captura de nêutrons pelo boro / Bárbara Smilgys. -- Campinas, SP : [s.n.], 2012.

Orientador: Sandro Guedes de Oliveira. Dissertação (mestrado) – Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".

1. Terapia por captura de nêutrons pelo boro. 2. Filme fino de boro. 3. Detector CR-39. I. Oliveira, Sandro Guedes de, 1973- II. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin". III. Título.

Informações para Biblioteca Digital

Título em inglês: Manufacturing and calibration of boron thin films for the ¹⁰B(n,α)⁷Li reaction rate measurement in the boron neutron capture therapy **Palavras-chave em inglês:** Boron neutron capture therapy Boron thin film CR-39 detector **Titulação:** Mestre em Física **Banca Examinadora:** Sandro Guedes de Oliveira [Orientador] José Augusto Chinellato Paulo Rogério Pinto Coelho **Data da Defesa:** 19-03-2012 **Programa de Pós-Graduação em:** Física



MEMBROS DA COMISSÃO JULGADORA DA TESE DE MESTRADO DE **BÁRBARA SMILGYS – R.A. 031384** APRESENTADA E APROVADA AO INSTITUTO DE FÍSICA "GLEB WATAGHIN", DA UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS, EM 19 / 03 / 2012.

COMISSÃO JULGADORA:

Prof. Dr. Sandro Guedes de Oliveira Orientador da Candidata - DRCC/IFGW/UNICAMP

Prof. Dr. Paulo Rogério Pinto Coelho - IPEN

Prof. Ør. José Augusto Chinellato – DRCC/IFGW/UNICAMP

AGRADECIMENTOS

Ao meu orientador pela receptividade e apoio, desde o primeiro dia; pelo otimismo e grandes idéias ao longo de todo o trabalho.

Ao professor Julio Cesar Hadler Neto, sempre radiante com a área, pelos comentários, idéias e incentivo.

A todos aqueles que executaram partes importantes desse trabalho; em particular, aos professores Paulo Rogério Pinto Coelho e Paulo de Tarso Dalledone Siqueira, pelas várias irradiações no IPEN, e à Mónica Morales Corredor e ao professor Fernando Alvarez, por toda a ajuda com o *sputtering*.

Aos amigos e aos colegas de grupo, pelas conversas, trocas de experiências e idéias.

Aos professores José Augusto Chinellato e Gabriela Castellano, pela disponibilidade, perguntas e sugestões.

Às professoras Carola Dobrigkeit Chinellato e Kyoko Furuya, pela dedicação e preocupação.

À minha mãe, por tudo e mais um pouco!

Ao meu pai, que sempre estará presente, por tudo.

À Thaís, pelo incentivo e apoio.

Ao Yugo, pelo companheirismo e todo o aprendizado.

Aos meus docinhos Espiga e Batata, pelos rabinhos sempre abanando.

RESUMO

O princípio de funcionamento da Terapia por Captura de Nêutrons pelo Boro (BNCT, Boron *Neutron Capture Therapy*) é a entrega seletiva de uma maior quantidade de átomos de boro às células cancerígenas do que àquelas saudáveis, seguida da irradiação com nêutrons que irá induzir a emissão de partículas α e íons de recuo de ⁷Li através da reação nuclear ¹⁰B(n, α)⁷Li. O objetivo deste trabalho é desenvolver uma metodologia para quantificar a taxa da reação de interesse através do uso da montagem de filmes finos de boro acoplados a detectores CR-39, que detectam as partículas α e os íons de recuo de ⁷Li. Este detector é composto por átomos de hidrogênio, carbono e oxigênio, os quais interagem com nêutrons rápidos e as partículas resultantes destas reações (de espalhamentos e de captura de nêutrons) também são detectadas pelo próprio detector. Deste modo, é possível quantificar, ao mesmo tempo, a reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ e a contribuição de nêutrons rápidos do fluxo. Essas medidas são fundamentais para os estudos de biodistribuição de átomos de ¹⁰B e de microdosimetria dos tecidos irradiados com nêutrons, levando ao planejamento da terapia em si. Os filmes finos de boro foram confeccionados por dois métodos, Deposição de Solução Química (CSD, Chemical Solution Deposition) e deposição por sputtering, e irradiados com nêutrons no reator nuclear IEA-R1 localizado no IPEN/CNEN. Os resultados obtidos para a caracterização e a calibração dos filmes finos de boro, além da calibração dos detectores CR-39 são aqui analisados. Foi possível confeccionar, por ambos os métodos, filmes finos de boro homogêneos e calibrar o sistema de filme fino de boro acoplado a detector CR-39 para a medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ e para a determinação da componente rápida do fluxo de nêutrons através do uso de filmes finos de urânio e tório, respectivamente.

ABSTRACT

The working principle of the Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) is the selective delivery of a greater amount of ¹⁰B atoms to the tumor cells than to the healthy ones, followed by neutron irradiation that will induce the emission of α particles and ⁷Li recoil ions through the nuclear reaction ${}^{10}B(n,\alpha)^7$ Li. The goal of this work is to develop a methodology to quantify the reaction rate of interest using an assembly of boron thin film coupled to CR-39 detector, which detects the α particles and the ⁷Li recoil ions. This detector is composed of atoms of hydrogen, carbon and oxygen, which interacts with fast neutrons and the resulting particles from these scattering and capture processes are also detected by the CR-39 detector. In this way, it is possible to quantify, at the same time, the reaction ${}^{10}B(n,\alpha)^7$ Li and the fast neutrons contribution to the flux. Those measurements are fundamental to the ¹⁰B biodistribution studies and tissue microdosimetry, leading to the therapy planning itself. The boron thin films were manufactured using two methods, Chemical Solution Deposition and sputtering deposition, and irradiated with neutrons at the nuclear reactor IEA-R1 located at IPEN/CNEN. The results obtained for the boron thin films characterization and calibration, as well as the CR-39 detectors calibration are analyzed here. It was possible to manufacture with both methods homogeneous boron thin films and to calibrate the assembly of boron thin film coupled to CR-39 detector for measuring the ${}^{10}B(n,\alpha)^7$ Li reaction rate and determining the fast component of the neutron flux through the use of uranium and thorium thin films, respectively.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1: Esquema do princípio de funcionamento da terapia de captura de nêutrons pelo boro.

Figura 2: Reações nucleares de captura de nêutrons térmicos pelo isótopo ¹⁰B.

Figura 3: Número de testes clínicos por país ou continente registrados atualmente. Fonte: *clinicaltrials.gov*, acessado em 20 de dezembro de 2011.

Figura 4: Seções de choque de reações de captura e de espalhamento de nêutrons pelos elementos ¹⁰B, ¹H, ¹⁴N, ¹²C e ¹⁶O.

Figura 5: Esquema da montagem utilizada para irradiar filmes finos de boro acoplados a detectores CR-39 e imagens obtidas em microscópio óptico (aumento de 1000×) para cada uma das superfícies do detector – frente do detector (superfície em contato com o filme fino de boro) e fundo do detector (superfície oposta ao filme fino de boro).

Figura 6: Exemplo do histograma tridimensional que representa a distribuição espacial de traços na superfície do detector CR-39. O histograma foi gerado a partir das contagens de traços na superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme de boro durante a irradiação com nêutrons.

Figura 7: Placas de mica muscovita.

Figura 8: Esquema do sistema de deposição de filmes finos por sputtering.

Figura 9: Esquema das etapas envolvidas na formação de filmes finos depositados por sputtering.

Figura 10: Alvo de boro usado para deposição de filme fino por *sputtering* e placas de aço inox 316L (após polimento) usadas como substrato para a deposição dos filmes finos de boro por *sputtering*.

Figura 11: À esquerda, filme fino de boro confeccionado por CSD, depositado sobre mica muscovita. À direita, filme fino de boro confeccionado por deposição por sputtering, depositado sobre aço inox.

Figura 12: Esquema da montagem utilizada na irradiação com nêutrons dos conjuntos de filme fino de boro acoplado a detector CR-39.

Figura 13: Esquema da instalação para estudos em BNCT (*Beam-hole* #3) do reator nuclear IEA-R1 do IPEN/CNEN. Fonte: *Paulo Rogério Pinto Coelho*

Figura 14: Espectro de fluxo diferencial relativo típico de um reator nuclear com as componentes energéticas em destaque. Baseado em: *Michael D. Glascock, "An Overview to Neutron Activation Analysis"*.

Figura 15: Placas de detectores CR-39 (à esquerda) e esquema da formação de traço latente devido ao dano causado à estrutura do detector pela passagem de partícula eletricamente carregada (à direita).

Figura 16: Imagem da superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (frente do detector), na qual é possível observar traços provenientes da reação nuclear ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ e das reações entre os nêutrons e o detector em si. O detector CR-39 foi atacado quimicamente por 30 minutos a 70°C em solução de 6,25 M de NaOH e a observação dos traços foi realizada com um microscópio óptico em magnificação nominal de 1000×.

Figura 17: Imagem da superfície do detector CR-39 que não estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (fundo do detector), na qual é possível observar somente os traços provenientes das reações entre os nêutrons e o detector em si. O detector CR-39 foi atacado quimicamente por 30 minutos a 70°C em solução de 6,25 M de NaOH e a observação dos traços foi realizada com um microscópio óptico em magnificação nominal de 1000×.

Figura 18: Imagem da superfície do detector mica muscovita, na qual é possível observar os traços de fissão do urânio induzida por nêutrons. O detector CR-39 foi atacado quimicamente por 90 minutos em HF 48% a 15°C e a observação dos traços foi realizada com um microscópio óptico em magnificação nominal de 40×.

Figura 19: Imagens dos detectores CR-39 que foram acoplados aos filmes finos de boro confeccionados por CSD com solução de concentração 0,03 g H_3BO_3 / ℓ H_2O e aquecidos a 400°C (à esquerda) e 750°C (à direita), cujas constantes de calibração obtidas são (4,57 ± 0,25).10⁻⁶ e (2,45 ± 0,13).10⁻⁶, respectivamente.

Figura 20: Seções de choque de fissão induzida por nêutrons para ²³²Th, ²³⁵U e ²³⁸U.

LISTA DE TABELAS

Tabela 1: Resumo dos testes clínicos de BNCT para o tratamento de glioblastoma concluídos recentemente.

Tabela 2: Características de confecção e irradiação para cada um dos filmes finos de boro.

Tabela 3: *P-values* obtidos para a análise da homogeneidade espacial dos filmes finos de boro confeccionados pelo método de CSD (resultados após divisão de cada um dos filmes finos de boro em quatro partes).

Tabela 4: *P-values* obtidos para a análise da homogeneidade espacial dos filmes finos de boro confeccionados pelo método de deposição por *sputtering*.

Tabela 5: Valores de densidade superficial de traços provenientes das partículas resultantes das interações entre os detectores CR-39 e os nêutrons incidentes (os filmes fino de boro listados na primeira coluna são apenas para referência, já que não influenciam nos valores das densidades de traços em questão) e as respectivas constantes de calibração para cada um dos detectores CR-39.

Tabela 6: Valores de densidade superficial de traços provenientes das partículas resultantes das interações entre os filmes finos de boro confeccionados por CSD e os nêutrons incidentes e as respectivas constantes de calibração para cada um desses filmes finos. Deve-se notar que somente o filme fino confeccionado com solução de ácido bórico de concentração 0,03 g $H_3BO_3 / \ell H_2O$ foi calibrado, pois apenas este foi irradiado com nêutrons na presença do filme fino de urânio de referência.

Tabela 7: Valores de densidade superficial de traços provenientes das partículas resultantes das interações entre os filmes finos de boro confeccionados por *sputtering* e os nêutrons incidentes e as respectivas constantes de calibração para cada um desses filmes finos.

Tabela 8: Comparação entre a composição atômica da pele humana e do CR-39.

SUMÁRIO

CAPÍTULO 1: Introdução	1
1.1. BNCT	3
1.2. Breve histórico da BNCT	6
1.3. Interação da radiação com a matéria	8
1.3.1. Interação de nêutrons com a matéria	9
1.3.2. Dosimetria e microdosimetria	11
1.4. Objetivos e motivações	14
CAPÍTULO 2: Metodologia	16
2.1. Caracterização dos filmes finos de boro confeccionados	17
2.1.1. Teste do χ^2	19
2.2. Calibrações	22
2.2.1. Detectores de partículas	23
2.2.2. Filmes finos de boro	25
2.3. Medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$	28
CAPÍTULO 3: Procedimentos Experimentais	29
3.1. Confecção de filmes finos de boro	29
3.1.1. CSD	30
3.1.2. Sputtering	32
3.2. Irradiação de filmes finos de boro	36
3.2.1. Irradiação com nêutrons no reator nuclear IEA-R1 do IPEN/CNEN	36
3.3. Detecção de partículas	40
3.3.1. Detectores CR-39	40
3.3.2. Mica muscovita	41
3.3.3. Revelação e observação de traços	42
3.3.4. Contagem dos traços	43

CAPÍTULO 4: Resultados	
4.1. Homogeneidade dos filmes finos de boro	47
4.1.1. CSD	47
4.1.2. Sputtering	49
4.2. Calibrações dos detectores CR-39 para a detecção de nêutrons rápidos	49
4.3. Calibrações dos filmes finos de boro	52
4.3.1. CSD	53
4.3.2. Sputtering	54
4.4. Medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$	55
CAPÍTULO 5: Discussões	56
5.1. Confecção de filmes finos de boro	56
5.2. Calibrações dos detectores CR-39 e dos filmes finos de boro e	
medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$	59
CAPÍTULO 6: Conclusões	62
6.1. Próximas etapas deste trabalho	65
6.2. Futuras aplicações deste trabalho	65
APÊNDICE A	68
APÊNDICE B	69
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	

CAPÍTULO 1

Introdução

A neoplasia maligna, câncer, é um grupo de diferentes doenças, cuja característica principal é o crescimento desregulado de células, que leva à formação de tumores malignos. Como estas células se dividem e crescem rapidamente, há um aumento no número total de células cancerígenas em uma região (que é chamada de tumor primário quando passa a ser clinicamente detectável). Algumas destas células podem penetrar tecidos normais adjacentes à área local do câncer, formando um novo tumor, chamado de metástase local. Além disso, cânceres também podem se espalhar para regiões mais distantes do corpo através do sistema linfático ou da corrente sangüínea, originando a formação de um tumor metastático (ou ainda, tumor secundário), que é uma das características de um tumor maligno. Deve-se notar que nem todos os tumores são cânceres; há os chamados tumores benignos, que não crescem incontrolavelmente nem tão pouco invadem tecidos adjacentes ou se espalham pelo corpo.

Atualmente, na tentativa de se combater cânceres, são utilizadas a radioterapia, a quimioterapia e a intervenção cirúrgica, separadamente ou em associações, dependendo do tipo e da região na qual se encontra o tumor maligno. Todas estas técnicas visam à destruição das células tumorais.

A intervenção cirúrgica é uma técnica invasiva que consiste na retirada da massa tumoral e só pode ser usada em casos em que o câncer é bem localizado e de fácil acesso.

A quimioterapia é o tratamento de um câncer através do uso de drogas que destroem células que

se dividem rapidamente (drogas antineoplásicas), ou seja, não só as células cancerígenas são atingidas, mas também aquelas da medula óssea, do aparelho digestivo e folículos capilares, resultando nas reações adversas mais comuns da quimioterapia: mielossupressão (supressão da função de produção de células sangüíneas), imunossupressão (redução na atividade ou eficiência do sistema imunológico), mucosite (inflamação do trato gastrointestinal) e alopecia (queda de pêlos).

Na radioterapia, utiliza-se radiação ionizante para combater certos tipos de cânceres bem localizados ou ainda para prevenir a recorrência do tumor maligno após uma cirurgia, e ao ser combinada com a quimioterapia, produzem efeitos potencializados no tratamento de certos cânceres.

A radioterapia é historicamente dividida em radioterapia com feixe externo, radioterapia com fonte selada (braquiterapia) e radioterapia com fonte não-selada. Na radioterapia com feixe externo, o paciente tem uma região particular do corpo irradiada diretamente com fótons (raios-X ou γ), elétrons, ou ainda partículas mais pesadas (prótons, nêutrons e íons) e dependendo da energia da radiação incidente, o tratamento é direcionado para cânceres superficiais ou mais profundos. Como o feixe com o qual o paciente é irradiado é externo, a radiação percorrerá um caminho de tecido saudável, que também sofrerá danos. Na braquiterapia, uma fonte de radiação encapsulada é inserida dentro ou próxima à área a ser tratada; o selamento da fonte radioativa permite que a radiação escape e atinja o tecido que a envolve, porém previne que o radioisótopos utilizados liberam radiação de menor alcance que só afetam uma região próxima, reduzindo o dano ao tecido saudável ao redor do câncer. Já na radioterapia com fonte não-selada, formas solúveis de elementos radioativos são administradas ao paciente. Os radioisótopos são escolhidos com base em suas propriedades químicas e biológicas de absorção seletiva por certos tecidos, órgãos ou glândulas.

1.1. BNCT

A terapia por captura de nêutrons pelo boro, BNCT (do inglês, *Boron Neutron Capture Therapy*), é uma possível terapia para tratamento de cânceres que, diferentemente do tratamento convencional por radioterapia, utiliza dois componentes que isoladamente não devem causar danos significativos aos pacientes: nêutrons de baixa energia (menor que 0,5 eV) e átomos de boro; por isso, BNCT é o que se chama de uma modalidade de radioterapia binária, já que primeiramente há injeção de um composto borado no paciente para posteriormente ser realizada a irradiação com nêutrons. O princípio físico no qual a terapia se baseia é a reação nuclear que ocorre ao se incidir nêutrons sobre o núcleo de ¹⁰B, que é um isótopo estável do boro, resultando na emissão de uma partícula α e um íon de lítio de recuo: ¹⁰B(n, α)⁷Li. Nesta reação de captura de nêutrons, o núcleo do isótopo ¹⁰B é levado a um estado excitado do ¹¹B (¹¹B*), que por ser um núcleo instável, irá decair para uma configuração mais favorável energeticamente, resultando em núcleos estáveis de ⁴He (partícula α) e ⁷Li (Locher, 1936).



Figura 1: Esquema do princípio de funcionamento da terapia de captura de nêutrons pelo boro.

O átomo alvo escolhido para a terapia por captura de nêutrons é o boro, pois além de ser um elemento estável e não tóxico (característica fundamental para uma terapia na qual há injeção do elemento no paciente), a seção de choque de captura de nêutrons térmicos pelo ¹⁰B é elevada ($\sigma_{térmico} =$ 3842 barns). Além disso, as partículas α e íons de recuo de ⁷Li emitidos na reação são altamente energéticos.

Para a reação ¹⁰B(n, α)⁷Li, em 94% dos eventos, temos ¹⁰B + n_{térmico} \rightarrow ¹¹B* $\rightarrow \alpha$ + ⁷Li*, ou seja, há a emissão de partículas α com energia cinética de 1,47 MeV e os íons de ⁷Li com 0,84 MeV, além da emissão de um raio γ de 478 keV produzido na desexcitação no íon ⁷Li*. A energia cinética das partículas α e dos íons de ⁷Li (2,31 MeV) é transferida, principalmente, por colisões inelásticas, ionizando e excitando o meio. Para os 6% dos eventos restantes, ¹⁰B + n_{térmico} \rightarrow ¹¹B* $\rightarrow \alpha$ + ⁷Li, toda a energia de 2,79 MeV é transformada em energia cinética, sem emissão de raio γ .



*Figura 2: Reações nucleares de captura de nêutrons térmicos pelo isótopo*¹⁰*B.*

Os alcances das partículas α e dos íons de ⁷Li em tecidos biológicos são curtos, ou seja, percorrem pequenas distâncias (na média, os alcances combinados são da ordem de 13 µm, que corresponde ao diâmetro de uma ou duas células); estas partículas possuem alto LET (do inglês, *Linear Energy Transfer*), ou seja, transferem grande quantidade de energia ao meio por unidade de comprimento – para a pele humana, $LET_{\alpha} \sim 200 \text{ keV}/\mu m$ e $LET_{7Li} \sim 210 \text{ keV}/\mu m$.

Com estas características, se os átomos de boro estiverem presentes somente nas células tumorais, ou seja, se for possível desenvolver compostos bioquímicos que levem núcleos de ¹⁰B preferencialmente às células cancerígenas, o dano causado ao câncer será significativamente maior que o causado nos tecidos saudáveis, podendo-se aplicar o tratamento a vários tipos de câncer (até mesmo metástases e tumores cerebrais).

Porém, para que seja possível realizar a BNCT em seres vivos, os compostos bioquímicos desenvolvidos devem atender a requisitos mínimos, tais como: baixa toxicidade sistêmica e baixa absorção por tecidos saudáveis com alta absorção pelo tumor; altas razões entre concentração de boro no tumor e concentração de boro no cérebro (para cânceres cerebrais) e entre concentração de boro no tumor e concentração de boro no sangue (razões maiores que 3-4:1); altas concentrações no tumor, de aproximadamente 20 μ g ¹⁰B/g tumor; rápida eliminação do sangue e dos tecidos saudáveis e persistência no tumor durante a BNCT. Desde o início das pesquisas em BNCT, vários compostos químicos borados foram desenvolvidos, mas atualmente somente três destes compostos são aprovados para uso em humanos devido à maior seletividade para células tumorais e não-toxicidade em tecidos: BPA (borofenilalanina, C₉H₁₂BNO₄), BSH (borocaptato de sódio, Na₂B₁₂H₁₁SH) e GB-10 (Na₂B₁₀H₁₀). (Barth *et al.*, 2005)

Assim, BNCT é significativamente seletiva, já que o dano é causado principalmente ao câncer, e como se trata de uma terapia com partículas de alto LET, não são necessárias mais do que uma ou duas sessões de irradiação dos pacientes, tornando o tratamento muito mais eficiente e confortável para o paciente do que aqueles convencionalmente utilizados.

1.2. Breve histórico da BNCT

O nêutron foi descoberto em 1932, por J. Chadwick, e em 1935, H. J. Taylor mostrou que núcleos de ¹⁰B capturavam nêutrons térmicos; com isso, G. L. Locher, já em 1936 propôs o princípio da *Boron Neutron Capture Therapy*.

Os primeiros testes clínicos foram realizados por L. E. Farr no *Brookhaven National Laboratory* (1951 – 1961) e por W. H. Sweet no *Massachusetts Institute of Technology* (1959 – 1961) com cânceres cerebrais e ambos os grupos obtiveram resultados decepcionantes que foram, em um primeiro momento, atribuídos à inadequada especificidade dos compostos químicos inorgânicos que deveriam levar átomos de boro até o câncer e conseqüente alta concentração de boro no sangue, que resultou em danos excessivos ao tecido cerebral saudável, além da penetração insuficiente do feixe de nêutrons térmicos nos tecidos. Testes clínicos foram retomados no Japão, em 1968, por H. Hatanaka, também com cânceres cerebrais, nos quais realizavam a remoção cirúrgica de toda a massa do tumor que poderia ser retirada e injetavam um composto borado com maior especificidade para células tumorais (BSH), porém, o problema da penetração do feixe de nêutrons térmicos ainda era presente. Somente em 1986, o tempo de residência dos átomos de ¹⁰B no tumor e a análise da quantidade de boro no sangue foram resolvidos (Sweet, 1997).

Mais recentemente (desde 1994) vários outros testes clínicos se iniciaram nos Estados Unidos e na Europa, marcando a transição entre o uso de irradiação com nêutrons térmicos para o uso de nêutrons epitérmicos, que penetram mais profundamente nos tecidos. Em especial, os resultados clínicos obtidos pelos grupos do *Brookhaven National Laboratory, Harvard/Massachusetts Institute of Technology* (que concluíram os testes em 1999) e da Suécia e Finlândia (análise até 2004), foram animadores: foi utilizado um composto borado também seletivo (BPA) no tratamento de pacientes com glioblastoma multiforme (câncer cerebral). Foi possível observar uma boa sobrevida destes pacientes tratados com BNCT, próximas daquelas obtidas com os tratamentos convencionais, nos quais entre 46% e 70% dos pacientes com menos de 50 anos de idade sobrevivem por aproximadamente 1 ano (mediana). Deve-se notar que além de uma sobrevida elevada para o tipo de câncer considerado, que é o tumor cerebral primário maligno mais agressivo nos humanos, os pacientes tiveram boa qualidade de vida, já que foram irradiados apenas uma ou duas vezes e não apresentaram efeitos colaterais tão desagradáveis como aqueles da quimioterapia (Barth *et al.*, 2005).

Instituição	Número de pacientes	tratados Tempo mediano de sobrevida (meses)	
Instituição	tratados		
BNL	53	13	
Harvard/MIT	18	12	
Suécia e Finlândia	17	18	

Tabela 1: Resumo dos testes clínicos de BNCT para o tratamento de glioblastoma concluídos recentemente.

Estudos e testes clínicos com outros tipos de câncer, além do glioblastoma multiforme, começaram também a ser realizados (melanoma, metástases de figado, tumores de pescoço, entre outros) buscando-se avaliar a eficiência da BNCT nos mais diversos casos clínicos. Atualmente, há registros de testes clínicos sendo realizados no Canadá (1), nos Estados Unidos (3), na Europa (8), na China (2) e no Japão (1). Na América Latina, há grupos que já estão em fase de testes pré-clínicos em BNCT: na Argentina, estão realizando testes com animais (Garabalino *et al.*, 2011) e no Brasil (grupo do Laboratório de Bioquímica e Biofísica do Instituto Butantan, São Paulo/SP) testes com células estão sendo iniciados (Faião-Flores *et al.*, 2011a,b).



Figura 3: Número de testes clínicos por país ou continente registrados atualmente. Fonte: clinicaltrials.gov, acessado em 20 de dezembro de 2011.

1.3. Interação da radiação com a matéria

Radiações ionizantes são geralmente caracterizadas pela habilidade de excitar e ionizar átomos da matéria com a qual interagem. Como a energia necessária para causar a emissão de um elétron de valência é da ordem de 4 eV a 25 eV, para serem chamadas de ionizantes, tais radiações devem então ter energia cinética maior que esse limiar. Os principais tipos de radiação ionizantes são raios γ , raios X, elétrons, íons pesados (tais como prótons e α) e nêutrons.

A Comissão Internacional de Unidades e Medidas de Radiação (ICRU, *International Commision on Radiation Units ans Measurements*), em 1971, recomendou que as radiações ionizantes fossem separadas em dois grupos distintos devido às grandes diferenças entre as interações de partículas carregadas e não carregadas (eletricamente) com a matéria:

 radiações diretamente ionizantes, que por serem partículas eletricamente carregadas transferem sua energia diretamente para o meio através de interações coulombianas ao longo de suas trajetórias; radiações indiretamente ionizantes, que por serem partículas eletricamente neutras não ionizam diretamente o meio (a transferência de energia se dá por interações dos tipos eletromagnética – como efeito fotoelétrico, espalhamento Compton, produção de pares – e por espalhamentos elásticos).

1.3.1. Interação de nêutrons com a matéria

Diferentemente das partículas eletricamente carregadas, nêutrons não interagem eletromagneticamente com a matéria, o que possibilita que atravessem o meio quase sem impedimentos, interagindo somente com os núcleos atômicos; e mesmo estas interações nucleares, em muitos materiais, têm baixa probabilidade de ocorrerem.

Esta probabilidade de ocorrência de uma interação é proporcional à seção de choque, cuja unidade é o *barn* (que tem dimensão de área, em analogia com o tamanho de um alvo) e os três tipos mais comuns de seções de choque de reações são absorção (captura), fissão e espalhamento.

Para a BNCT, as reações de interesse são as de captura de nêutrons com emissão de partículas α e prótons, que contribuem para a componente da dose de alto LET, as reações de captura de nêutrons com emissão de raios γ , que resultam na componente de dose de baixo LET, e as reações de espalhamento, que também contribuem para a componente de dose de alto LET. Como o meio a ser irradiado é biológico, teremos interesse particular nas interações de nêutrons com hidrogênio, nitrogênio, carbono e oxigênio, que estão presentes em grandes concentrações em tecidos humanos.

É conveniente, para a análise da contribuição de cada uma dessas reações, dividir o campo de nêutrons em três regiões de acordo com a energia:

 nêutrons térmicos: o movimento térmico (que é característico da temperatura do meio) é descrito pela distribuição de Maxwell-Boltzmann, ou seja, possuem um valor mais provável de energia cinética (que a 20°C é 0,025 eV), porém todos os nêutrons com energia cinética abaixo de 0,5 eV são chamados de térmicos;

- nêutrons epitérmicos: possuem energia cinética entre 0,5 eV e 10 keV;
- nêutrons rápidos: energia cinética acima de 10 keV.

Idealmente, o feixe de nêutrons usado em BNCT deve ter um fluxo de nêutrons da ordem de 10⁹ n.cm⁻².s⁻¹ (para que o tempo de irradiação do paciente durante a terapia seja de aproximadamente 60 minutos), ser bem colimado e possuir energia bem definida: para tratamentos de cânceres superficiais deve-se ter um feixe de nêutrons puramente térmico e para cânceres localizados em regiões mais profundas, um feixe de nêutrons epitérmicos. Estas faixas de energia são escolhidas para os feixes de terapia, pois os nêutrons são espalhados em reações com os núcleos dos átomos que compõem os tecidos e estes espalhamentos fazem com que a intensidade do feixe diminua exponencialmente com a profundidade do percurso dos nêutrons até o alvo e que o feixe não fique bem colimado, levando à irradiação de outras regiões do corpo. Porém, algumas fontes de nêutrons disponíveis (como os reatores nucleares) apresentam uma contaminação de nêutrons rápidos (além de raios gama), que interagem com os núcleos dos átomos dos tecidos causando dano indesejável às células saudáveis.

É necessário notar que a energia do feixe de nêutrons incidentes deve ser bem definida, já que ao se tratar tumores mais profundos, por exemplo, é preciso que o paciente seja irradiado com nêutrons epitérmicos e assim, nêutrons térmicos (além de rápidos) também podem ser considerados como contaminação nesta configuração.

1.3.2. Dosimetria e microdosimetria

A dosimetria trata da medida da dose absorvida como resultado da interação de radiação ionizante com a matéria. No caso da BNCT, trata da dose absorvida pelo paciente que teve um composto bioquímico com átomos de boro injetado em seu organismo e posteriormente foi exposto à irradiação com um feixe de nêutrons.

Pode-se definir dose absorvida como o valor médio da energia depositada por unidade de massa (ICRU de 1980), que em muitos casos fornece uma medida adequada para correlação com os efeitos biológicos induzidos pelas várias aplicações de radiações ionizantes. Porém, em certos casos, a dose absorvida (que é essencialmente uma densidade de energia, ou seja, o conceito é macroscópico) não fornece uma descrição adequadamente detalhada da irradiação, o que dificulta a previsão das conseqüências biológicas.

Quando uma terapia para câncer utiliza radiações ionizantes que depositam grande quantidade de energia em um curto percurso no tecido, devem ser levados em conta os aspectos estocásticos das deposições de energia em volumes de dimensões celulares; assim, a ICRU de 1983 introduziu o conceito de microdosimetria, para descrever os efeitos biológicos devido a essa distribuição da energia transferida às estruturas subcelulares e celulares.

Assim, os estudos em microdosimetria buscam determinar a distribuição de LET resultante da interação entre a radiação e a matéria; mais especificamente, a natureza da transferência de energia que ocorre em microvolumes. Nestes casos, pretende-se estudar a densidade de energia em uma pequena região (átomos ou moléculas) e são então definidas, nas regiões do volume de interesse, quantidades que possam descrever bem essas situações: energia depositada (*imparted*, ϵ), energia específica (z) e energia *lineal* (y).

Para radioterapias que utilizam partículas de alto LET e curto alcance (como no caso das

partículas α e íons de ⁷Li da BNCT), os efeitos biológicos são fortemente influenciados pela distribuição heterogênea da energia específica (z) entregue às células tumorais. Assim, é fundamental que sejam realizadas análises microdosimétricas, e não somente dosimétricas, pois valores médios de dose absorvida não descrevem bem o comportamento da irradiação e os conseqüentes efeitos biológicos nessas regiões.

No caso da BNCT, a quantidade de átomos de boro no câncer é calculada para que haja um evento por célula (um átomo de ¹⁰B capturando um nêutron, resultando na emissão de uma partícula α e um íon de ⁷Li), assim a distribuição de energia nessa região não deve ser significativamente heterogênea. Porém, o boro acumulado em outras partes (como em células saudáveis em torno do câncer ou no sangue) deve gerar menos eventos por estar em menor quantidade e a deposição de energia será heterogênea.

Além da heterogeneidade da distribuição de energia devido à biodistribuição do boro, outras componentes relevantes que surgem da irradiação de tecidos biológicos com feixe de nêutrons também resultam em distribuições de energia heterogêneas e devem ser levadas em consideração:

- raios γ provenientes da fonte de nêutrons e da reação ¹H(n, γ)²H;
- prótons resultantes da reação $^{14}N(n,p)^{14}C$;
- contaminação de nêutrons rápidos no feixe (epi)térmico incidente, que induzirá reações de espalhamento de prótons.



Figura 4: Seções de choque de reações de captura e de espalhamento de nêutrons pelos elementos ¹⁰B, ¹H, ¹⁴N, ¹²C e ¹⁶O. (Os valores de seção de choque foram retirados da base de dados ENDF/B VII.0)

Para lidar com essas situações de heterogeneidade de deposição de energia, ou ainda com a heterogeneidade de alvos como células ou núcleos celulares, além de ser necessária a análise microdosimétrica, a ICRU 86 de 2011 recomenda que se trabalhe com uma descrição detalhada do campo de irradiação e do sistema irradiado. Nas terapias para cânceres que utilizam um feixe de nêutrons para irradiar os pacientes, a medida do espectro de energia e detalhes da irradiação são de difícil obtenção, mas em muitos casos, descrições mais simplificadas dessa irradiação, tais como a distribuição de fluência de nêutrons incidentes e a taxa de eventos resultantes, são suficientes e apropriadas para descrevê-la e prever seus efeitos biológicos.

1.4. Objetivos e motivações

Para que a BNCT possa ser efetivamente usada no tratamento de cânceres, é importante que se desenvolvam compostos bioquímicos não-tóxicos altamente seletivos, capazes de levar átomos de boro em quantidades muito maiores até as células cancerígenas do que até as células saudáveis, e que os pacientes sejam submetidos à irradiações com feixes de nêutrons que não possuam contaminação de nêutrons rápidos (dependendo da configuração, nêutrons térmicos ou epitérmicos são também considerados como contaminação). No entanto, não basta que requisitos como estes sejam satisfeitos; é necessário o planejamento detalhado da terapia: deve-se determinar a quantidade de átomos de boro que devem estar presentes no tumor e o tempo de exposição do paciente ao feixe de nêutrons levando-se em consideração a maximização da dose entregue ao tumor e a minimização da dose entregue ao paciente devido às reações com tecidos saudáveis. Assim, é essencial que a taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ seja medida o mais precisamente possível.

Este trabalho tem como principais objetivos a confecção de filmes finos de boro e a calibração de cada um deles, possibilitando a sua utilização na medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$, além também da calibração dos detectores utilizados para detectar as partículas resultantes das interações dos nêutrons incidentes com a montagem utilizada durante a irradiação (filme fino de boro acoplado a detector CR-39).

Com relação à confecção dos filmes finos de boro, os objetivos são que estes sejam homogêneos (devem ter átomos de boro distribuídos uniformemente sobre sua superfície) e que tenham espessura que permita a análise das contagens de traços das partículas produtos das reações entre os nêutrons incidentes e a montagem utilizada, ou seja, é necessário que a quantidade de átomos de boro presente nos filmes finos seja grande o suficiente para resultar em uma boa estatística de eventos quando irradiados com fluência (fluxo integrado no tempo) de nêutrons da ordem daquela utilizada em

BNCT (~ 10^{11} n.cm⁻²) e que não seja tão grande a ponto de os traços detectados no detector CR-39 ficarem sobrepostos, dificultando assim suas contagens.

Os filmes finos de boro devem ser confeccionados de tal maneira que a distribuição espacial de átomos de boro seja a mais homogênea possível para garantir que as medidas de distribuição dos eventos não sejam influenciadas pela distribuição de átomos de boro na superfície do filme fino. A homogeneidade dos filmes finos de boro confeccionados também é importante para que, em trabalhos futuros, eles possam ser usados para realizar medidas de biodistribuição de ¹⁰B em culturas de células e tecidos, que são necessárias em estudos microdosimétricos e dosimétricos.

Com relação às calibrações, os objetivos são a medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ a partir dos filmes finos de boro e a monitoração da contaminação de nêutrons rápidos no feixe incidente a partir da caracterização do detector CR-39 como um monitor das reações entre nêutrons rápidos e os elementos da montagem utilizada.

Através da utilização de filmes finos de boro, é possível que a taxa da reação seja medida diretamente a partir da contagem de eventos induzidos por nêutrons incidentes, dadas certas características da irradiação, tais como a fluência de cada componente energética do feixe de nêutrons. Assim, as medidas da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ se tornam mais precisas, já que são independentes de simulações computacionais ou de outros monitores.

Com a monitoração da contaminação de nêutrons rápidos, é possível determinar mais precisamente a dose entregue ao paciente devido à reação de interesse da BNCT, que irá danificar as células cancerígenas, e a dose entregue devido às interações dos nêutrons com os tecidos saudáveis. Assim, pode-se planejar a terapia de forma a maximizar seus resultados sem que o paciente sofra danos em excesso às células saudáveis.

CAPÍTULO 2

Metodologia

Neste trabalho, dois dos objetivos principais são a confecção de filmes finos de boro homogêneos, que são irradiados com nêutrons, e a posterior calibração de cada um desses filmes finos de boro, que podem ser usados como monitores na medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$.

Para identificar as partículas α e íons de ⁷Li emitidos quando os filmes finos de boro são irradiados com nêutrons, são utilizados os detectores de traços nucleares de estado sólido (SSNTD, do inglês *Solid State Nuclear Track Detector*) CR-39. Estes são detectores plásticos com composição química C₁₂H₁₈O₇, que além de detectar as partículas α e íons de ⁷Li de interesse da BNCT, também interagem com o feixe de nêutrons incidentes.

Como visto anteriormente, as fontes de nêutrons disponíveis possuem um espectro de energia que, para análise, é usualmente dividido em três regiões: componente de nêutrons térmicos (até 0,5 eV), componente epitérmica (de 0,5 eV a 10 keV) e componente rápida (acima de 10 keV). Para a montagem utilizada, sabe-se que os núcleos dos átomos que compõe o detector CR-39 (hidrogênio, carbono e oxigênio) interagem com os nêutrons da componente rápida do fluxo incidente e que o boro interage principalmente com a componente térmica (Durham *et al.*, 1989; Deevband *et al.*, 2011). Assim, além da calibração dos filmes finos de boro, é necessário que os detectores utilizados também sejam calibrados. A calibração dos detectores CR-39 é importante para a monitoração da componente

de nêutrons rápidos do feixe incidente.

Neste capítulo são descritas a metodologia utilizada para a análise da homogeneidade espacial dos filmes finos de boro confeccionados e o método utilizado para realizar as calibrações dos detectores CR-39 e dos filmes finos de boros. Os detalhes experimentais serão descritos no Capítulo 3.

2.1. Caracterização dos filmes finos de boro confeccionados

Busca-se confeccionar filmes finos de boro que sejam espacialmente homogêneos, ou seja, que os átomos de boro depositados sobre um substrato estejam distribuídos uniformemente sobre sua superfície. Para avaliar tal homogeneidade, são levadas em conta as contagens de traços observados nas superfícies dos detectores CR-39.

Os filmes finos de boro confeccionados foram acoplados a detectores CR-39 e irradiados com nêutrons como no esquema mostrado na Figura 5. Após a irradiação, os detectores são tratados quimicamente para que seja possível observar os traços das partículas em microscópio óptico (descrição experimental detalhada no Capítulo 3). É possível observar traços em ambas as superfícies do detector:

- a superfície do detector CR-39 que não estava em contato com o filme de boro durante a irradiação, que aqui chamamos de "fundo do detector", possui somente os traços de partículas resultantes das reações dos nêutrons com o próprio detector; após a contagem desses traços, a densidade superfícial de traços nesta superfície será denominada por ρ_{CR-39}.
- a superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação, que aqui chamamos de "frente do detector", possui traços de partículas resultantes das reações entre os nêutrons e o filme fino de boro e das reações dos nêutrons com o próprio detector; após a contagem desses traços, a densidade superfícial de traços nesta superfície será

denominada ρ_{TOTAL} , a partir da qual podemos obter a densidade de traços provenientes somente das reações com o filme fino de boro, $\rho_B = \rho_{TOTAL} - \rho_{CR-39}$ (deve-se notar que esta igualdade é válida, pois como o detector CR-39 possui densidade constante e homogênea, podemos assumir que $\rho_{CR-39}^{frente} = \rho_{CR-39}^{fundo}$).

Para o estudo da homogeneidade do filme fino de boro, são utilizadas as contagens totais de traços observados na frente do detector, já que as reações entre os nêutrons e o próprio detector não dependem da posição da reação no detector, ou seja, são reações uniformemente distribuídas.



CR-39 (fundo) em aumento de 1000x

Figura 5: Esquema da montagem utilizada para irradiar filmes finos de boro acoplados a detectores CR-39 e imagens obtidas em microscópio óptico (aumento de 1000×) para cada uma das superfícies do detector – frente do detector (superfície em contato com o filme fino de boro) e fundo do detector (superfície oposta ao filme fino de boro).

2.1.1. Teste do χ^2

A partir das contagens de traços observados na superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons é possível gerar um histograma tridimensional que representa a distribuição espacial dos traços na superfície em questão. Como os filmes finos de boro confeccionados devem ser espacialmente homogêneos, a distribuição das contagens no histograma tridimensional deve ser plana; assim, o histograma é ajustado com uma função plana cujo único parâmetro livre é a altura, que se aproxima da média do histograma.



Figura 6: Exemplo do histograma tridimensional que representa a distribuição espacial de traços na superfície do detector CR-39. O histograma foi gerado a partir das contagens de traços na superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme de boro durante a irradiação com nêutrons.

Após ajustar o histograma tridimensional com um plano, pode-se aplicar o teste do χ^2 e calcular a probabilidade de a função utilizada no ajuste descrever os dados experimentais contidos no histograma (*P-value*). O teste do χ^2 fornece um critério para avaliar (probabilisticamente) a consistência entre uma hipótese teórica e um conjunto de dados experimentais. O valor de χ^2 é definido como:

$$\sum_{i=1}^{N} \frac{(x_i - \epsilon_i)^2}{\sigma_i^2}$$
(1)

onde x_i é o valor experimental medido, ϵ_i é o valor esperado (corresponde à média da distribuição binomial ou da distribuição de Poisson) e σ_i^2 é o erro da medida experimental, que pode ser considerado como a variância correspondente à distribuição normal das médias da amostra de dados experimentais.

A diferença $(x_i - \epsilon_i)$ deve ser esperada mesmo que a teoria esteja absolutamente correta, pois há flutuações randômicas inevitáveis no processo de obtenção das medidas experimentais. Porém, se espera que esta diferença esteja centrada em zero. Assim, pode-se interpretar que:

- para valores de $\chi^2 \approx N$, a teoria descreve bem os dados experimentais;
- se o valor obtido para $\chi^2 \ll N$, provavelmente as incertezas σ_i foram superestimadas;
- e se $\chi^2 \gg N$, pode-se dizer que as diferenças entre x_i e ε_i não se devem somente à flutuações randômicas (a teoria não descreve bem os dados experimentais) ou ainda que as incertezas σ_i foram subestimadas.

Entretanto, essas condições se aplicam somente para o caso em que os N termos do somatório são mutuamente independentes, o que não descreve a maioria dos casos de interesse prático; assim, define-se o número de graus de liberdade (η) como o número de termos independentes no somatório:

$$\eta = N - n$$
úmero de condições de contorno (2)

Com isso, as interpretações do valor obtido para χ^2 podem ser generalizadas para as condições $\chi^2 \approx \eta, \chi^2 \ll \eta \in \chi^2 \gg \eta.$

Também se torna possível definir o χ^2 reduzido como:

$$\tilde{\chi}^2 = \frac{\chi^2}{\eta} \tag{3}$$

Conhecendo-se a distribuição de χ^2 reduzido, pode-se interpretar probabilisticamente os valores de χ^2 e avaliar a probabilidade de se obter valores maiores ou menores para χ^2 do que o valor obtido.

A distribuição gama do χ^2 reduzido para um número de graus de liberdade é dada pela expressão:

$$G_{\eta}(\tilde{\chi}^2) = \frac{1}{2^{\frac{\eta}{2}} \Gamma\left(\frac{\eta}{2}\right)} (\tilde{\chi}^2)^{\frac{\eta}{2}-1} e^{\frac{-\tilde{\chi}^2}{2}}$$
(4)

onde temos que

- para n inteiro: $\Gamma(n + 1) = n!$
- para n semi-inteiro: $\Gamma\left(n+\frac{1}{2}\right) = (2n-1) \times (2n-3) \times ... \times 5 \times 3 \times \frac{\sqrt{\pi}}{2^n}$

Assim, a probabilidade de se obter um valor de χ^2 reduzido menor que o valor de χ^2 reduzido observado ($\tilde{\chi}_0^2$) é dada pela função gama incompleta:

$$\int_{0}^{\tilde{\chi}_{0}^{2}} G_{\eta}(\tilde{\chi}^{2}) d\tilde{\chi}^{2} = \mathcal{P}[\tilde{\chi}^{2} < \tilde{\chi}_{0}^{2}]$$
 (5)

E a probabilidade de se obter um valor de χ^2 reduzido maior que o valor de χ^2 reduzido 21

observado ($\tilde{\chi}_{o}^{2}$) é:

$$\int_{\tilde{\chi}_{0}^{2}}^{\infty} G_{\eta}(\tilde{\chi}^{2}) d\tilde{\chi}^{2} = \mathcal{P}[\tilde{\chi}^{2} > \tilde{\chi}_{0}^{2}]$$
(6)

Assim, se $\mathcal{P}[\tilde{\chi}^2 > \tilde{\chi}_0^2]$ é considerada grande, é razoável assumir que a hipótese teórica é consistente com os dados experimentais e se $\mathcal{P}[\tilde{\chi}^2 > \tilde{\chi}_0^2]$ é considerada pequena, é razoável supor que os dados experimentais não podem ser descritos pela hipótese teórica escolhida. Por convenção, buscam-se valores de $\mathcal{P}[\tilde{\chi}^2 > \tilde{\chi}_0^2] \ge 0,05$ para que a hipótese seja considerada como uma boa descrição para o conjunto de dados experimentais.

É importante notar que o teste do χ^2 e o cálculo da probabilidade $\mathcal{P}[\tilde{\chi}^2 > \tilde{\chi}_o^2]$ dependem fortemente da boa determinação das incertezas experimentais σ_i .

2.2. Calibrações

As calibrações dos detectores CR-39 e dos filmes finos de boro utilizam os valores de densidade superficial de traços obtidos a partir da contagem dos traços observados nos detectores. A densidade superficial de traços depende das reações entre os nêutrons incidentes e os átomos presentes nos filmes finos de boro e nos detectores CR-39, (isto é, depende da quantidade de reações que ocorreram); assim, a densidade superficial de traços pode ser escrita como:

$$\rho = \sum_{i} N^{i} \varepsilon^{i} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{i}(E)}{dE} \phi(E) dE$$
(7)

onde

- Nⁱ é o número de átomos do elemento *i* que interagiram com os nêutrons incidentes;
- $-\epsilon^{i}$ é a eficiência de detecção dos traços resultantes das reações entre o elemento *i* e os nêutrons;
- $-\sigma_i(E)$ é a seção de choque da reação que ocorre entre o elemento *i* e nêutrons de energia E;
- $\phi(E)$ é a fluência de nêutrons incidentes com energia E.

A integral descreve como se dá a interação entre os átomos do elemento *i* e para cada energia dos nêutrons incidentes. Como o espectro de energia dos nêutrons incidentes não é conhecido, aproxima-se a integral de acordo com intervalos de energia de interesse (térmica, epitérmica e rápida) e valores médios de seção de choque para tais intervalos de energia:

$$\int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{i}(E)}{dE} \varphi(E) dE \approx \overline{\sigma}_{i}^{térmico} \varphi_{térmico} + \overline{\sigma}_{i}^{epitérmico} \varphi_{epitérmico} + \overline{\sigma}_{i}^{rápido} \varphi_{rápido}$$
(8)

Assim, para as calibrações dos detectores CR-39 e dos filmes finos de boro, é preciso obter experimentalmente os valores das densidades superficiais de traços correspondentes e as fluências de nêutrons incidentes que induziram as reações de interesse. Os valores das fluências de nêutrons são obtidos a partir de monitores auxiliares: filme fino de urânio para $\varphi_{térmico}$ e filme fino de tório para $\varphi_{rápido}$.

2.2.1. Detectores de partículas

Para a análise da componente de nêutrons rápidos do fluxo, é necessário calibrar o detector utilizado na detecção das partículas resultantes das interações com os nêutrons incidentes (CR-39) e para isso, um filme fino de tório previamente calibrado é usado (Iunes *et al.*, 2004). Como esta calibração do detector CR-39 depende do uso do filme fino de tório, estes devem ser irradiados em conjunto. As
reações entre nêutrons e CR-39 serão induzidas por nêutrons rápidos (Durham *et al.*, 1989; Deevband *et al.*, 2011), e o mesmo ocorre para o ²³²Th (Apêndice B). A densidade de traços de fissão na mica muscovita acoplada ao filme fino de tório, ρ_{Th-232} , é dada por:

$$\rho_{Th-232} = N_{Th-232} \varepsilon_{Th-232} \int_0^\infty \frac{d\sigma^{Th-232}(E)}{dE} \phi(E) dE$$
(9)

onde ρ_{Th-232} é determinada pela contagem de traços e N_{Th-232} (o número de átomos de tório no filme fino de tório) deve ser conhecido. Além disso, a eficiência de detecção de traços na mica é tida como $\varepsilon_{Th-232} =$ 1 (Bigazzi *et al.*, 1995). A integral do produto entre a seção de choque diferencial e a fluência de nêutrons pode ser aproximada por $\overline{\sigma}_{rápido}^{Th-232} \phi_{rápido}$ e a Equação (9) fica:

$$\rho_{\text{Th}-232} = N_{\text{Th}-232} \bar{\sigma}_{\text{rápido}}^{\text{Th}-232} \varphi_{\text{rápido}}$$
(10)

da qual pode-se calcular a fluência de nêutrons rápidos, $\phi_{\text{rápido}}.$

Para a densidade de traços no CR-39, ρ_{CR-39} :

$$\rho_{CR-39} = \sum_{i} N_{CR-39}^{i} \varepsilon_{CR-39}^{i} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{i}^{CR-39}(E)}{dE} \phi(E) dE$$
(11)

de onde definimos a constante de calibração para o detector CR-39, K_{CR-39}, como:

$$K_{CR-39} = \sum_{i} N^{i}_{CR-39} \varepsilon^{i}_{CR-39} \sigma^{CR-39}_{i,rapido}$$
(12)

24

onde o índice *i* representa todas as reações possíveis entre os nêutrons incidentes e os três elementos presentes no detector (C, H e O), N_{CR-39}^{i} é o número de átomos de certo elemento *i* presente no detector e ε_{CR-39}^{i} é definido como a eficiência de detecção para o elemento *i*. Além disso, K_{CR-39} pode ser reescrita em função de parâmetros cujos valores são conhecidos:

$$K_{CR-39} = \frac{\rho_{CR-39}}{\varphi_{rapido}}$$
(13)

Nota-se que as seções de choque para as interações entre nêutrons incidentes e o detector em si estão contidas na constante de calibração. A densidade de traços para o CR-39 (ρ_{CR-39}) é obtida a partir da contagem de traços no lado do detector que não foi acoplado ao filme fino de boro durante a irradiação, ou seja, os traços são devidos somente às reações entre nêutrons rápidos e elementos do detector.

É importante perceber que a constante de calibração K_{CR-39} não deve depender da irradiação, pois a densidade de traços ρ_{CR-39} depende da fluência de nêutrons rápidos (quanto maior a fluência, maior será a densidade de traços), nem tão pouco pode depender do filme fino de boro ao qual o detector foi acoplado, ou seja, para todos os detectores utilizados, é esperado que sejam obtidas constantes de calibração próximas, dentro do intervalo de incerteza.

2.2.2. Filmes finos de boro

Já para a análise da componente térmica do fluxo de nêutrons, é necessário utilizar um filme fino de urânio previamente calibrado, já que as principais contribuições para a captura de nêutrons pelo boro e para a fissão induzida do urânio vêm de nêutrons térmicos. Novamente, como as calibrações dos filmes finos de boro dependem do uso do filme fino de urânio, eles devem ser irradiados ao mesmo tempo. Mais especificamente, para os filmes finos de urânio, os nêutrons que irão induzir fissão são principalmente térmicos e epitérmicos através da reação ²³⁵U(n,f). Nêutrons rápidos irão induzir fissão principalmente no isótopo ²³⁸U (Apêndice B). Assim, a densidade de traços de fissão, $\rho_{\rm U}$, determinada pela mica muscovite acoplada ao filme fino de urânio é dada por (o índice *j* representa os dois isótopos citados):

$$\rho_{\rm U} = \sum_{j=1}^2 N_{\rm U}^j \varepsilon_{\rm U}^j \int_0^\infty \frac{d\sigma_j^{\rm U}(E)}{dE} \phi(E) dE \qquad (14)$$

ou ainda:

$$\rho_{U} = \rho_{U-235} + \rho_{U-238}$$

$$= N_{U-235} \varepsilon_{U-235} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{235}^{U}(E)}{dE} \phi(E) dE$$

$$+ N_{U-238} \varepsilon_{U-238} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{238}^{U}(E)}{dE} \phi(E) dE \qquad (15)$$

com $\varepsilon_{235} = \varepsilon_{238} = 1$ (eficiência de detecção de traços na mica muscovita). Logo, para calcular a fluência de nêutrons térmicos incidentes ($\varphi_{térmico}$), é necessário notar que ²³⁸U irá fissionar somente com interações com nêutrons rápidos e a fissão do ²³⁵U por nêutrons rápidos será desprezível quando comparada aos eventos com nêutrons térmicos e epitérmicos. Portanto, $\varphi_{térmico}$ pode ser calculada através de:

$$\varphi_{\text{térmico}} = \frac{1}{\overline{\sigma}_{\text{térmico}}^{U-235}} \left(\frac{\rho_{U} - N_{U-238} \overline{\sigma}_{rápido}^{U-238} \varphi_{rápido}}{N_{U-235}} - I_{\text{epitérmico}}^{U-235} \varphi_{\text{epitérmico}} \right)$$
(16)

onde $N_{\rm U\text{-}238}$ é igual a 0,9928 $N_{\rm U}$ (abundância natural do isótopo 238 U é 99,28%) e a contribuição de

nêutrons epitérmicos para a fissão do ²³⁵U é aproximada para ($N_{U-235}I_{epitérmico}^{U-235}\phi_{epitérmico}$), na qual $I_{epitérmico}^{U-235}$ é a integral de ressonância. Deve-se notar que para o reator nuclear utilizado (IEA-R1, IPEN/CNEN) a fluência de nêutrons epitérmicos é estimada como aproximadamente 25% da fluência de nêutrons térmicos (dados fornecidos para irradiação com nêutrons realizada no *Beam Hole 3* do reator IEA-R1 do IPEN/CNEN, em 24 de agosto de 2011, com o reator nuclear a uma potência de 4,5 MW).

Assim, para a calibração do filme fino de boro utilizado:

$$\rho_{\rm B} = N_{\rm B} \varepsilon_{\rm B} \int_0^\infty \frac{d\sigma^{\rm B}(E)}{dE} \phi(E) dE \qquad (17)$$

$$\rho_{\rm B} = N_{\rm B} \epsilon_{\rm B} \bar{\sigma}^{\rm B}_{t{\rm \acute{e}rmico}} \phi_{t{\rm \acute{e}rmico}} \qquad (18)$$

já que a principal contribuição vem de nêutrons térmicos (a seção de choque de captura de nêutrons térmicos pelo boro é muito maior que para nêutrons epitérmicos, além de a componente térmica do fluxo de nêutrons incidentes ser maior que a componente epitérmica). Assim, define-se a constante de calibração do filme fino de boro, K_B , como:

$$K_{\rm B} = N_{\rm B} \varepsilon_{\rm B} \tag{19}$$

que pode ser reescrita em função de parâmetros conhecidos:

$$K_{\rm B} = \frac{\rho_{\rm B}}{\bar{\sigma}_{t{\rm \acute{e}rmico}}^{\rm B} \phi_{t{\rm \acute{e}rmico}}} \tag{20}$$

A densidade de traços provenientes somente das interações entre nêutrons e o filme fino de boro, ρ_B , é obtida a partir da subtração entre a densidade de todos os traços presentes no lado do detector que estava acoplado ao filme fino de boro durante a irradiação e a densidade de traços para o CR-39 (ρ_{CR-39}).

É importante perceber que, ao contrário das constantes de calibração K_{CR-39} , as constantes K_B devem ser diferentes para cada um dos filmes finos de boro.

2.3. Medida da taxa da reação ¹⁰B(n,α)⁷Li

Após a calibração do filme fino de boro, pode-se calcular a taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ induzida neste filme. Define-se tal taxa como:

$$R_{\rm B} = \int_0^\infty \frac{{\rm d}\sigma^{\rm B}(E)}{{\rm d}E} \varphi(E) {\rm d}E \qquad (21)$$

que pode ser reescrita em função dos parâmetros conhecidos:

$$R_{\rm B} = \frac{\rho_{\rm B}}{K_{\rm B}} \tag{22}$$

É possível então, obter a taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ para cada uma das irradiações utilizando-se apenas filmes finos de boro (isto é, sem simulações ou outros monitores para a reação de interesse) e com o método de calibração desenvolvido, e suas hipóteses, obtém-se as componentes do fluxo de nêutrons incidentes e a taxa da reação de interesse, que em trabalhos futuros, pode ser utilizada nos cálculos dosimétricos e microdosimétricos, como descrito no Capítulo 1.

CAPÍTULO 3

Procedimentos experimentais

A primeira etapa deste trabalho consistiu em confeccionar filmes finos de boro que sejam espacialmente homogêneos, ou seja, que possuam átomos de boro distribuídos uniformemente sobre sua superfície. Para tanto, foram escolhidos dois métodos de deposição: a deposição de solução química (CSD, do inglês *Chemical Solution Deposition*) e a deposição por *sputtering*. Após serem confeccionados, estes filmes finos de boro devem ser irradiados com nêutrons no reator nuclear IEA-R1 do IPEN/CNEN. Porém, para que seja possível quantificar a taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$, é preciso antes acoplá-los a detectores de traços nucleares CR-39, onde as partículas resultantes serão detectadas. Para que os traços das partículas α e íons de ⁷Li sejam observáveis em microscópio óptico, é necessário realizar um tratamento químico nos detectores CR-39. Neste capítulo, os procedimentos experimentais envolvidos em cada uma das etapas citadas serão descritos detalhadamente.

3.1. Confecção de filmes finos de boro

A primeira característica requerida para os filmes de boro confeccionados é que sejam finos, isto é, que possuam espessura muito menor que o alcance das partículas que se deseja detectar, para que estas partículas não percam energia ao percorrer o próprio filme; no caso dos filmes finos de boro usados para estudos em BNCT, suas espessuras devem ser menores que alguns micrômetros (no caso do trióxido de boro, B_2O_3 , com densidade de 2,55 g.cm⁻³, por exemplo, os alcances de partículas α de 1,47 MeV e íons de ⁷Li de 0,84 MeV são 3,84 µm e 2,13 µm, respectivamente) (SRIM, 2008). Além disso, a deposição deve resultar em filmes espacialmente homogêneos, com átomos de boro distribuídos uniformemente sobre a superfície, para que ao se estudar a distribuição de átomos de ¹⁰B, as medidas não sejam influenciadas pelo próprio filme fino de boro.

3.1.1. CSD

A deposição de filmes finos de boro através da utilização de uma solução química se baseia no método já utilizado pelo Grupo de Cronologia do Departamento de Raios Cósmicos e Cronologia (IFGW, Unicamp) para a confecção de filmes finos de urânio e tório (Yagoda, 1949; Iunes, 1990). A técnica consiste em depositar uma solução química sobre uma placa de mica muscovita, que é um mineral que após sofrer clivagem resulta em superfícies muito lisas (é importante que o substrato sobre o qual o filme fino é depositado tenha superfície muito lisa, sem irregularidades, para que a deposição seja homogênea). Como é de interesse que sejam confeccionados filmes finos de boro, a solução química escolhida para a deposição é de ácido bórico (H₃BO₃) em água.



Figura 7: Placas de mica muscovita.

A solução de ácido bórico em água deve ser misturada a um colóide (neste trabalho foi utilizado o Parlodion) – cuja função é homogeneizar a solução, resultando em uma deposição mais uniforme – dissolvida em éter e álcool etílico. A mistura deve ser derramada cuidadosamente sobre uma placa de mica muscovita (previamente colocada sobre uma mesa nivelada) na qual se construiu uma piscina com o auxílio de fita isolante para delimitar a área superficial do filme fino. Os filmes finos confeccionados com o auxílio de uma piscina sobre a mica têm uma maior concentração de átomos de boro nas regiões de borda, as quais devem ser cortadas para que o filme resultante seja homogêneo.

Após a deposição da solução sobre a mica, é necessário esperar a evaporação do éter e do álcool etílico (à temperatura ambiente) para se obter então uma película seca de Parlodion que contém o ácido bórico. Para melhor aderência da solução de ácido bórico à mica muscovita e para que o ácido seja transformado em óxido (já que não é desejável a presença de hidrogênio no filme fino de boro, pois este elemento interage com nêutrons rápidos), é necessário aquecer o filme fino depositado a 400°C. Nesta temperatura, em poucos minutos o Parlodion entra em combustão. O tempo total de aquecimento dos filmes finos deve ser de 4 horas, para que ocorra a transformação do ácido em óxido. Também foi testada a temperatura de aquecimento de 750°C (também por 4 horas) para verificar se na temperatura de aquecimento de 400°C já ocorre toda a transformação do ácido em óxido.

As concentrações da solução utilizada na deposição dos filmes finos de boro foram escolhidas com base na quantidade de átomos de ¹⁰B por cm² presente na superfície de um filme de espessura igual ao alcance das partículas α e íons de ⁷Li. Com isso, o filme fino, que deve ter espessura muito menor (no caso de filme fino de B₂O₃, a espessura deve ser muito menor que 2 µm), deverá ser confeccionado a partir de uma solução de concentração bem menor.

Assim, foram escolhidos, para deposição de filmes finos de boro, soluções de ácido bórico em água que resultassem em distribuições das ordens de 10^{13} , 10^{14} e 10^{15} átomos de 10 B por cm², ou seja, aproximadamente 0,03, 0,30 e 3,00 gramas de H₃BO₃ por litro de água, respectivamente.

Cada uma das concentrações de solução de ácido bórico foi depositada sobre uma placa de mica muscovita e para realizar a deposição de forma homogênea, 20 $\mu\ell$ de álcool etílico, 400 $\mu\ell$ de éter e 20 $\mu\ell$ solução de Parlodion (C₂₀H₁₆N₄; 1,80 g Parlodion / 30 m ℓ de éter) foram misturados a 400 $\mu\ell$ da solução de ácido bórico.

3.1.2. Sputtering

A técnica de deposição de filmes finos por *sputtering* consiste em bombardear um material (alvo) com um feixe de íons, que induzem uma cascata de colisões na superfície deste alvo, provocando a ejeção (*sputtering*) de seus átomos.

Na deposição por *sputtering* o alvo e o porta-amostra com o substrato (material no qual o filme fino será depositado) são mantidos em uma diferença de potencial, com o alvo como catodo e o substrato como anodo, dentro de uma câmara com vácuo e injeta-se gás de argônio a uma determinada pressão. O feixe de íons de argônio irá em direção ao alvo (catodo) devido ao campo elétrico presente na câmara. Quando os íons de argônio colidem com o alvo, alguns de seus átomos são ejetados (em direções aleatórias) e parte destes chega até o substrato e se condensam ali, formando um filme fino.



Figura 8: Esquema do sistema de deposição de filmes finos por sputtering.

A taxa de formação do filme fino no substrato depende da quantidade de átomos ejetados do alvo (que depende do fluxo de íons de gás que chega ao alvo) e do *yield* do material (número de átomos do alvo que sofreram *sputtering* por íons de argônio com determinada energia cinética) que está sendo submetido ao *sputtering*. Para o boro, o *yield* estimado para um feixe de argônio de 1000 eV, incidente a 45°, é de 1,36. Além disso, as características físico-químicas do substrato (e de sua superfície) e a temperatura na qual o substrato é mantido durante o processo de deposição por *sputtering* também são parâmetros importantes para o crescimento de filmes finos e sua estrutura final.

A formação de filmes finos por deposição via *sputtering* passa pelas etapas esquematizadas na Figura 9. O elemento que sofreu *sputtering* chega ao substrato na forma atômica ou molecular (dependendo da composição do alvo), podendo ser adsorvido ou re-evaporado. Quando ocorre a colisão e combinação de dois átomos na superfície do substrato, o agrupamento se torna mais estável, tendo maior probabilidade de permanecer adsorvido na superfície. Desta forma, a união com mais átomos se torna possível, levando à formação de ilhas de átomos (etapa chamada de nucleação) e subseqüente aumento no número de átomos de cada ilha. Estas ilhas crescem e se tornam grandes o suficiente para se tocarem, iniciando-se a etapa de coalescência, que permanece até que o filme fino atinja a continuidade (que em alguns casos não ocorre antes de o filme fino atingir uma espessura média de centenas de angstroms) (Chapman, 1980).



Figura 9: Esquema das etapas envolvidas na formação de filmes finos depositados por sputtering.

Para a confecção dos filmes finos de boro por *sputtering*, um alvo de boro 99,9% puro foi bombardeado com um feixe de íons de argônio de 1400 eV em fluxo de ~ 7,5 sccm, por intervalos de tempo de deposição variados (5, 15 e 25 minutos). Os átomos de boro foram depositados sobre placas

de aço inox 316L de 1 cm x 2 cm, que foram mantidas a temperaturas de aproximadamente 350°C durante todo o processo (realizado no Laboratório de Pesquisas Fotovoltaicas do Departamento de Física Aplicada do IFGW, Unicamp). O aço inox 316L foi escolhido como substrato para a deposição dos filmes finos de boro, pois além de apresentar superfície muito lisa após polimento, os elementos presentes em sua composição química (principais elementos presentes são ferro, crômio e níquel) não interagem com nêutrons de forma a liberar partículas que possam ser detectadas pelo detector escolhido (detector CR-39).



Figura 10: Alvo de boro usado para deposição de filme fino por sputtering (à esquerda) e placas de aço inox 316L (após polimento) usadas como substrato para a deposição dos filmes finos de boro por sputtering (à direita).

Após a confecção dos filmes finos de boro, as amostras foram submetidas à análise por XPS (do inglês, *X-Ray Photoelectron Spectroscopy*) para determinar se havia presença de boro sobre o aço inox, confirmando assim a deposição do filme fino.



Figura 11: À esquerda, filme fino de boro confeccionado por CSD, depositado sobre mica muscovita. À direita, filme fino de boro confeccionado por deposição por sputtering, depositado sobre aço inox.

3.2. Irradiação de filmes finos de boro

Depois de confeccionados, os filmes finos de boro foram acoplados a detectores de traços nucleares CR-39, que detectam as partículas α e íons de ⁷Li resultantes da reação nuclear ¹⁰B(n, α)⁷Li, para que então as montagens fossem irradiadas com nêutrons na linha de BNCT do reator nuclear IEA-R1 do IPEN/CNEN, localizado em São Paulo/SP.



Figura 12: Esquema da montagem utilizada na irradiação com nêutrons dos conjuntos de filme fino de boro acoplado a detector CR-39.

3.2.1. Irradiação com nêutrons no reator nuclear IEA-R1 do IPEN/CNEN

O feixe de nêutrons na instalação para estudos em BNCT não é um feixe colimado, ou seja, a radiação que atinge a amostra não tem a característica de um feixe paralelo. O reator tem dimensões maiores que o diâmetro da face circular frontal ("saída" do feixe) do tubo de irradiação (*Beam-hole* número 3); assim, a radiação entra tanto pela face circular do *Beam-hole* #3 quanto pela "lateral" do mesmo e sofre espalhamentos e absorções nos materiais que estão no interior do tubo antes de atingir a amostra.



Figura 13: Esquema da instalação para estudos em BNCT (Beam-hole #3) do reator nuclear IEA-R1 do IPEN/CNEN. Fonte: Paulo Rogério Pinto Coelho

O espectro de energia típico de um reator nuclear, com as componentes energéticas do feixe em destaque, é mostrado na Figura 14. Nota-se que a maior contribuição para o fluxo de nêutrons é devido à componente térmica do feixe, porém, há presença de nêutrons epitérmicos e nêutrons rápidos.

A componente de nêutrons térmicos do fluxo consiste em nêutrons de baixa energia (até 0,5 eV) em equilíbrio térmico com os átomos presentes nos moderadores do reator. Em temperatura ambiente, o espectro de energia de nêutrons térmicos pode ser descrito pela distribuição de Maxwell-Boltzmann com energia mais provável de 0,025 eV. Na maioria das posições de irradiação em reatores, 90-95% dos nêutrons que chegam até a amostra são térmicos. A componente de nêutrons epitérmicos do fluxo consiste de nêutrons que foram parcialmente moderados (energia entre 0,5 eV e 10 keV) e em uma posição típica de irradiação em um reator, o fluxo de nêutrons epitérmicos representa cerca de 2% do fluxo total de nêutrons. A componente de nêutrons rápidos do fluxo (acima de 10 keV) consiste de nêutrons primários da fissão do combustível do reator que possuem energia inicial de cerca de 2 MeV e não são completamente termalizados. Em uma posição típica de irradiação em um reator, este fluxo representa cerca de 5% do fluxo total de nêutrons.



Figura 14: Espectro de fluxo diferencial relativo típico de um reator nuclear com as componentes energéticas em destaque. Baseado em: Michael D. Glascock, "An Overview to Neutron Activation Analysis".

Para o reator nuclear utilizado nas irradiações das montagens de filmes finos de boro acoplados a detectores CR-39, o IEA-R1 do IPEN/CNEN, o fluxo de nêutrons térmicos é da ordem de 10⁸ nêutrons.cm⁻².s⁻¹ e o fluxo de nêutrons epitérmicos é estimado em 25% do fluxo de nêutrons térmicos. Os tempos de irradiação escolhidos foram de 60 minutos e 10 minutos, escolhidos em função da quantidade de boro presente nos filmes finos.

Quando os nêutrons incidem na montagem (como esquematizado na Figura 12), a componente térmica interage principalmente com o filme fino de boro e a componente rápida com os elementos presentes no detector CR-39. Nêutrons, por serem partículas eletricamente neutras, interagem pouco com a matéria. Então, apesar de a seção de choque da reação de captura de nêutrons térmicos pelo boro

ser alta (3842 barns), a quantidade de átomos de boro presente nos filmes finos é muito grande, fazendo com que a diminuição no número total de átomos de boro dos filmes seja insignificante (o percentual de átomos de 10 B que interagem com nêutrons térmicos em uma fluência da ordem de 10^{10} nêutrons.cm⁻² é da ordem de 10^{-10}), o que possibilita o uso desses filmes por várias irradiações.

Na Tabela 2 encontram-se as características de confecção e irradiação de cada um dos filmes finos de boro.

Filme fino	Método de	Características	Intervalo de tempo de
de boro	confecção	da confecção	irradiação (minutos)
1		0,03 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O; 400°C	60
2	CSD	0,03 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O; 750°C	60
3	CSD	0,29 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O; 400°C	10
4		2,99 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O; 400°C	10
5		5 minutos	10
6	sputtering	15 minutos	10
7		25 minutos	10

Tabela 2: Características de confecção e irradiação para cada um dos filmes finos de boro.

3.3. Detecção de partículas

3.3.1. Detectores CR-39

Como já dito anteriormente, a detecção das partículas resultantes das interações entre a montagem e os nêutrons incidentes é feita a partir da utilização do detector plástico CR-39.

Quando partículas carregadas eletricamente atravessam um detector de traços nucleares de estado sólido (SSNTD, do inglês, *Solid State Nuclear Track Detector*) causam extensivas ionizações em seu material (uma partícula α ioniza quase todas as moléculas adjacentes a sua trajetória) e esse processo primário de ionização desencadeia uma série de novos processos químicos que resultam na criação de radicais químicos livres e assim, ao longo da trajetória de uma partícula, é criada então uma região danificada chamada de traço latente (Nikezic & Yu, 2004).



Figura 15: Placas de detectores CR-39 (à esquerda) e esquema da formação de traço latente devido ao dano causado à estrutura do detector pela passagem de partícula eletricamente carregada (à direita).

Quando o detector contendo traços latentes é tratado com uma solução química agressiva adequada (como uma solução aquosa de hidróxido de sódio ou então ácido fluorídrico), as reações químicas serão mais intensas ao longo dos traços latentes, ou seja, a solução química corrói toda a superfície do detector, mas em uma taxa maior na região danificada. Assim, é formado o traço da partícula, que pode ser observado ao microscópio óptico.

3.3.2. Mica muscovita

Além da detecção das partículas resultantes das interações entre os nêutrons incidentes e a montagem (filme fino de boro acoplado a detector CR-39), é necessário, como descrito no Capítulo 2, que filmes finos de urânio e tório sejam irradiados juntamente com a montagem para que seja possível calibrar os detectores CR-39 (com auxílio do monitor da componente rápida do feixe de nêutrons, o filme fino de tório) e cada um dos filmes finos de boro confeccionados (com o auxílio do filme fino de urânio).

Os filmes finos de urânio e tório utilizados foram confeccionados pelo método de CSD (por integrantes do Grupo de Cronologia), sendo depositados sobre mica muscovita, e para detectar os traços de fissão de urânio e tório induzidos por nêutrons utiliza-se como detector também uma placa de mica muscovita.

A mica muscovita também é um SSNTD, porém, ao contrário do detector CR-39, que é um detector de material isotrópico cujos traços formados são cônicos, a mica é um detector anisotrópico. Assim, os traços formados pela passagem de partículas carregadas serão polígonos (anisotropia de abertura do traço) devido à grande diferença entre as velocidades de corrosão da região danificada da mica e da região não danificada durante o ataque químico. Para o caso da mica muscovita, os traços aparecem como paralelogramos, já que as velocidades de ataque são diferentes para as diferentes direções em sua superfície (Wagner & Van den Haute, 1992).

3.3.3. Revelação e observação de traços

A revelação dos traços ocorre através do ataque químico do detector, isto é, quando o detector é imerso em solução química corrosiva e os traços latentes se tornam visíveis em microscópio óptico. Para o detector CR-39, o ataque químico padrão é feito com solução aquosa de 6,25 M de hidróxido de sódio (NaOH) à temperatura de 70°C por 400 minutos. Com um ataque químico padrão, os traços atingem um patamar ótimo de revelação, no qual os diâmetros e o nível de cinza de cada traço podem ser relacionados com a energia e a massa da partícula incidente, tornando possível a diferenciação das partículas que originaram esses traços.

A solução aquosa de 6,25 M de NaOH deve ser preparada de modo a resultar em uma solução final de 200 m ℓ a temperatura ambiente. Para seu preparo, 50 g de NaOH são dissolvidos em um pouco de água deionizada (em torno de 100 m ℓ) e deve ser resfriada até a temperatura ambiente antes de se completar com o restante de água, o que também deve ser feito aos poucos, com o cuidado de se manter a temperatura ambiente da solução final. Como a reação química entre NaOH e água é exotérmica, a solução estará em temperaturas muito superiores que a ambiente e então se a quantidade total de NaOH for dissolvida em 200 m ℓ de água, a solução final não terá o mesmo volume a temperatura ambiente.

Esta solução final de 6,25 M de NaOH deve então ser colocada em um banho térmico a 70°C e após se atingir o equilíbrio térmico, os detectores CR-39 são submersos. Quando se chega ao tempo final estabelecido para a realização do ataque químico, os detectores são rapidamente submersos em água para frear a reação química.

Neste trabalho, como a densidade superficial de traços esperada em cada detector CR-39 é grande, já que além dos traços das partículas α e íons de ⁷Li resultantes da reação ¹⁰B(n, α)⁷Li, também estão presentes os traços das partículas resultantes das interações entre os nêutrons e o próprio detector

CR-39, o ataque químico com solução aquosa de NaOH foi realizado por apenas 30 minutos, para que os traços revelados não ficassem sobrepostos.

Já para a mica muscovita (quando desempenhando o papel de detector de partículas), o ataque químico utilizado para revelar os traços de fissão induzida por nêutrons é com ácido fluorídrico 48% em banho térmico a 15°C por 90 minutos (ataque padrão). As micas são submersas em HF e ao se chegar no tempo final do ataque químico, as placas de mica devem ser cuidadosamente submersas em solução saturada de bicarbonato de sódio para frear a reação química.

Para a observação dos traços formados nos detectores CR-39 após ataque químico, foi utilizado o microscópio óptico *Zeiss Axioplan 2 Imaging Microscope* com magnificação nominal de 1000× e para a observação dos traços de fissão induzida por nêutrons formados na mica muscovita foi utilizado o microscópio óptico *Leitz Dialux 20 EB Microscope* com magnificação nominal de 40×.

3.3.4. Contagem dos traços

Para realizar a contagem dos traços observados em microscópio óptico, os detectores CR-39, após ataque químico, tiveram suas superfícies divididas em campos de contagens não sucessivos, pois os detectores utilizados são grandes (detectores com 9 cm² de área superficial foram acoplados aos filmes finos de boro confeccionados por CSD e detectores de 1 cm² de área foram acoplados aos confeccionados por *sputtering*), mas que devem cobrir a maior área superficial possível. Os campos de contagem devem ter área previamente determinada e constante ao longo de toda a contagem para que depois sejam calculadas as densidades superficiais de traços.

As contagens foram feitas manualmente, sem auxílio de *softwares*. A automatização das contagens de traços não foi utilizada neste trabalho, pois há regiões em que há traços encavalados, o que dificulta o estabelecimento de um critério de reconhecimento de traços bem definido (como faixas

de diâmetro e de nível de cinza de interesse). Além disso, é necessário que, para que os traços não sejam confundidos com sujeiras ou danos no material do detector, o foco seja levemente alterado durante as contagens, já que o comportamento de um traço sob alteração de foco é bem diferente do comportamento de sujeiras: os traços "somem" e "aparecem" em foco correspondendo à observação da profundidade desse traço.



Figura 16: Imagem da superficie do detector CR-39 que estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (frente do detector), na qual é possível observar traços provenientes da reação nuclear ¹⁰B(n,a)⁷Li e das reações entre os nêutrons e o detector em si. O detector CR-39 foi atacado quimicamente por 30 minutos a 70°C em solução de 6,25 M de NaOH e a observação dos traços foi realizada com um microscópio óptico em magnificação nominal de 1000×.

Na Figura 16, uma imagem (um campo de contagem) da superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (frente do detector), é possível observar traços provenientes da reação nuclear ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ e das reações entre os nêutrons e o detector em si. Nota-se que a densidade de traços é elevada (ainda há sobreposição de alguns traços), o

que confirma a necessidade de se reduzir o tempo do ataque químico. Porém, como o ataque químico foi realizado por apenas 30 minutos, grande parte dos traços não foram revelados completamente, fazendo com que a contagem dos traços seja mais complicada. É necessário notar que, neste trabalho, os traços provenientes de diferentes reações não são diferenciados.

O critério adotado para se realizar as contagens dos traços foi considerar apenas os traços maiores e mais escuros. Este é um critério que depende fortemente do observador e que deve ser mantido ao longo de todas as contagens (de todos os campos e de todos os detectores). O mesmo critério foi adotado nas contagens das superfícies dos detectores CR-39 que não estavam em contato com o filme fino de boro durante as irradiações com nêutrons (fundo do detector), na qual só é possível observar os traços provenientes das interações entre os nêutrons incidentes e o detector em si (Figura

17).



Figura 17: Imagem da superficie do detector CR-39 que não estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (fundo do detector), na qual é possível observar somente os traços provenientes das reações entre os nêutrons e o detector em si. O detector CR-39 foi atacado quimicamente por 30 minutos a 70°C em solução de 6,25 M de NaOH e a observação dos traços foi realizada com um microscópio óptico em magnificação nominal de

Já para a contagem de traços de fissão de urânio e tório observados na mica muscovita, como o ataque químico utilizado é o padrão, todos os traços são revelados. A mica muscovita também é dividida em campos de contagem de área previamente determinada e constante para que depois seja possível calcular as densidades superficiais de traços.

Os traços na mica muscovita também possuem profundidade, que pode ser observada em pequenas alterações de foco, o que possibilita a diferenciação entre os traços e sujeiras (ou defeitos) da mica muscovita. Estas contagens também foram realizadas manualmente (sem auxílio de *softwares*) e os traços de fissão de urânio na mica podem ser vistos na Figura 18.



Figura 18: Imagem da superfície do detector mica muscovita, na qual é possível observar os traços de fissão do urânio induzida por nêutrons. O detector CR-39 foi atacado quimicamente por 90 minutos em HF 48% a 15°C e a observação dos traços foi realizada com um microscópio óptico em magnificação nominal de 40×.

CAPÍTULO 4

Resultados

4.1. Homogeneidade dos filmes finos de boro

Para a análise da homogeneidade espacial dos filmes finos de boro, foram contados os traços observados nas superfícies dos detectores CR-39 que estavam em contato com os filmes finos durante as irradiações com nêutrons. Nessa superfície (frente do detector) são observados traços provenientes das interações entre os nêutrons e o filme de boro e entre os nêutrons e o próprio detector. Na análise da homogeneidade, pretende-se verificar se o filme fino de boro foi depositado uniformemente sobre o substrato. Os filmes finos de boro, em contato com detectores CR-39, são irradiados com nêutrons para induzir a reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$. As densidades superfíciais de traços resultantes nos CR-39 são proporcionais às quantidades de boro na fonte, por isso, estas densidades foram usadas para determinar a homogeneidade de cada filme fino, dentro do erro estatístico associado às contagens.

4.1.1. CSD

Para os filmes finos de boro confeccionados pelo método de CSD, observa-se que todos

apresentam *P-values* menores do que 0,05, entretanto, como os filmes finos confeccionados por este método são grandes (aproximadamente, cada filme fino possui área superficial de 4 cm²), podem ser cortados ainda em 4 partes (de cerca de 1 cm²) e os resultados para cada uma dessas partes menores são apresentados na Tabela 3.

Características da confecção por CSD		Densidade superficial total de traços (10 ⁶ cm ⁻²)	P-value
		$2,77\pm0,02$	0,01
	400°C	$2,\!68 \pm 0,\!01$	0,11
		$2{,}66\pm0{,}02$	0,04
		$2,67 \pm 0,01$	0,82
$0,03 \text{ g } \Pi_3 \text{ b } 0_3 / \ell \Pi_2 0_3$	750°C	$3,08 \pm 0,02$	0,82
		$3,11 \pm 0,02$	0,04
		$3,12 \pm 0,02$	0,90
		$3,03\pm0,02$	0,47
	400°C	6,74 ± 0,01	0,01
0 29 g H2BO2 / l H2O		$7,07\pm0,02$	0
0,29 g H ₃ D0 ₃ 7 € H ₂ 0	400 C	$7{,}40\pm0{,}02$	0
		$7{,}02\pm0{,}02$	0
	400°C	$5{,}47\pm0{,}02$	0,77
2.99 g H₃BO₃ / ℓ H₂O		$5{,}66\pm0{,}02$	0,44
, , , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	·	$5,92 \pm 0,02$	0,14
		$5,81 \pm 0,02$	0,01

 Tabela 3: P-values obtidos para a análise da homogeneidade espacial dos filmes finos de boro confeccionados pelo

 método de CSD (resultados após divisão de cada um dos filmes finos de boro em quatro partes).

4.1.2. Sputtering

Os filmes finos de boro confeccionados pelo método de deposição por *sputtering* não podem ser cortados, já que são depositados sobre placas de aço inox e, portanto, devem ter toda a sua superfície (de 2 cm² para cada filme fino) analisada. Na Tabela 4 encontram-se os resultados de homogeneidade para estes filmes finos de boro.

Tempo de deposição por <i>sputtering</i> (minutos)	Densidade superficial total de traços (10 ⁶ cm ⁻²)	P-value
5	$0,\!46 \pm 0,\!01$	0,01
15	$1,67 \pm 0,02$	0,31
25	$2{,}59\pm0{,}03$	0,18

Tabela 4: P-values obtidos para a análise da homogeneidade espacial dos filmes finos de boro confeccionados pelo método de deposição por sputtering.

Deve-se notar que as incertezas associadas a cada valor de densidade superficial total de traços são pequenas devido à boa estatística de contagem dos traços.

4.2. Calibrações dos detectores CR-39 para a detecção de nêutrons rápidos

Como se pretende calibrar os detectores CR-39, as reações que devem ser consideradas são somente aquelas entre os nêutrons incidentes e o detector em si; assim, os traços a serem contados devem ser somente das partículas resultantes dessas interações. Para isso, são contados os traços revelados na superfície que não estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (fundo do detector).

Os resultados para as densidades superficiais de traços nessas superfícies dos detectores são mostrados na Tabela 5. Deve-se notar que a primeira coluna é somente para referência, uma vez que o filme fino de boro ao qual o detector CR-39 foi acoplado não influencia na densidade de traços de interesse para a calibração em questão.

Para as calibrações dos detectores CR-39, é necessário que se conheça a componente rápida da fluência de nêutrons incidentes, já que são estes os nêutrons que interagem com o detector CR-39, e para realizar esta medida foi utilizado um filme fino de tório de referência.

Sabendo-se que a densidade de átomos de ²³²Th presentes no filme fino de tório utilizado (obtida da calibração prévia, Iunes *et al.*, 2004) é N_{Th-232} = (1,570 ± 0,058).10¹⁷ cm⁻², que a seção de choque média de fissão induzida por nêutrons rápidos é $\overline{\sigma}_{rápido}^{Th-232}$ = 0,12 b (calculada através da integração da seção de choque na faixa de energia de interesse) e que a densidade superficial de traços de fissão contados na mica muscovita é ρ_{Th-232} = (1,57 ± 0,06).10³ cm⁻², obtém-se, da Equação (10), que a fluência de nêutrons rápidos é $\varphi_{rápido}$ = (1,67 ± 0,09).10¹⁰ nêutrons.cm⁻².

A partir da Equação (13), utilizando o valor de fluência de nêutrons rápidos calculado com o auxílio do filme fino de tório e os valores de densidade superficial dos traços de interesse (Tabela 5), calcula-se as constantes de calibração para os detectores CR-39, também mostrados na Tabela 5.

Detector acoplado a filme fino de boro (<i>referência</i>)	Densidade de traços no detector CR-39 (10 ⁵ cm ⁻²)	Constante de calibração do detector CR-39 (10 ⁻⁶)
<i>CSD</i> : 0,03 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O; 400°C	$4,\!58 \pm 0,\!04$	$4,57 \pm 0,25$
<i>CSD</i> : 0,03 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O; 750°C	$2,45 \pm 0,03$	$2,45 \pm 0,13$
sputtering por 5 minutos	$0,97\pm0,02$	$5,81 \pm 0,33$
sputtering por 15 minutos	$1,05 \pm 0,02$	$6,\!29 \pm 0,\!36$
sputtering por 25 minutos	$0,\!87\pm0,\!02$	$5,21 \pm 0,30$

Tabela 5: Valores de densidade superficial de traços provenientes das partículas resultantes das interações entre os detectores CR-39 e os nêutrons incidentes (os filmes fino de boro listados na primeira coluna são apenas para referência, já que não influenciam nos valores das densidades de traços em questão) e as respectivas constantes de calibração para cada um dos detectores CR-39.

Nota-se que os valores obtidos para as constantes de calibração são próximos exceto pelo segundo detector listado na Tabela 5. Era esperado que todas as constantes obtidas fossem aproximadamente iguais, já que os detectores são de mesmo material e densidade. Com relação ao detector CR-39 cuja constante de calibração obtida é de um valor mais baixo, após uma comparação com outros detectores, foi possível notar que o ataque químico foi diferente, já que os diâmetros dos traços observados neste detector são menores (Figura 19).

A partir dos valores listados na Tabela 5, pode-se calcular a média das constantes de calibração, chegando-se ao valor final para a constante de calibração dos detectores CR-39 utilizados: $K_{CR-39} = (4,86 \pm 0,64).10^{-6}$.



Figura 19: Imagens dos detectores CR-39 que foram acoplados aos filmes finos de boro confeccionados por CSD com solução de concentração 0,03 g H_3BO_3/ℓ H_2O e aquecidos a 400°C (à esquerda) e 750°C (à direita), cujas constantes de calibração obtidas são $(4,57 \pm 0,25).10^{-6}$ e $(2,45 \pm 0,13).10^{-6}$, respectivamente.

4.3. Calibrações dos filmes finos de boro

Já para a calibração dos filmes finos de boro, como o interesse é calibrar somente o filme, são contados os traços presentes na superfície do detector CR-39 que estava em contato com o filme fino de boro durante a irradiação com nêutrons (frente do detector). Entretanto, como dito anteriormente, nesta superfície do detector CR-39 também se encontram os traços provenientes das interações dos nêutrons com o próprio detector. Assim, para se obter a densidade de traços correspondente somente aos traços devido a reação ¹⁰B(n, α)⁷Li, a densidade superficial total encontrada para a frente do detector deve ter o valor da densidade superficial de traços encontrada para o fundo do detector subtraído. Isto é, $\rho_B = \rho_{TOTAL} - \rho_{CR-39}$. Os valores de ρ_{TOTAL} encontram-se nas Tabelas 3 e 4 (para filmes finos de boro confeccionados por CSD e por *sputtering*, respectivamente) e os valores de ρ_{CR-39} encontram-se na Tabela 5.

Para a calibração dos filmes finos de boro, é necessário que seja utilizado um filme fino de

urânio como monitor das componentes térmica e epitérmica do feixe de nêutrons, pois o filme fino de boro interage principalmente com nêutrons térmicos. O isótopo ²³⁵U tem fissões induzidas por nêutrons térmicos (a seção de choque varia com 1/v nesta região) com seção de choque $\overline{\sigma}_{térmico}^{U-235} = 585,08$ b (valor de seção de choque para a energia mais provável de nêutrons térmicos, 0,025 eV, obtido da base de dados *Evaluated Nuclear Data File*). Na faixa de nêutrons epitérmicos, a seção de choque apresenta vários picos de ressonância, cuja integral é I^{U-235}_{epitérmico} = 275 b. O isótopo ²³⁸U tem fissões induzidas por nêutrons rápidos com seção de choque de ordem menor que 10⁻⁴ b (calculada através da integração da seção de choque na faixa de energia de interesse) e, portanto esta contribuição pode ser desconsiderada.

Sabendo-se que a densidade de átomos de urânio (isótopos ²³⁵U e ²³⁸U em abundância natural de 0,72% e 99,28%, respectivamente) presentes no filme fino de urânio utilizado (obtida da calibração prévia, Guedes, 2001) é $N_U = (5,96 \pm 0,14).10^{16}$ cm⁻² e que a densidade superficial de traços de fissão contados na mica muscovita é $\rho_U = (1,61 \pm 0,05).10^4$ cm⁻², obtém-se, da Equação (16), que a fluência de nêutrons térmicos é $\phi_{térmico} = (5,60 \pm 0,22).10^{10}$ nêutrons.cm⁻².

A partir da Equação (20), utilizando o valor de fluência de nêutrons térmicos calculado com o auxílio do filme fino de urânio e os valores de densidade superficial de traços ρ_B , pode-se calcular a constante de calibração de cada filme fino de boro (K_B).

4.3.1. CSD

Para os filmes finos de boro confeccionados por CSD, os valores de densidade superficial de traços devido às interações entre nêutrons e átomos de boro (ρ_B) se encontram na Tabela 6, assim como suas respectivas constantes de calibração (K_B).

Deve-se notar que somente o filme fino de boro confeccionado com deposição de solução de ácido bórico de concentração 0,03 g H_3BO_3 / ℓ H_2O foi calibrado, pois apenas este filme fino de boro foi

irradiado com nêutrons na presença do filme fino de urânio de referência. Além disso, foram calibradas somente as regiões que resultaram em *P-values* maiores que 0,05 (Tabela 3).

Filme fino de boro	Densidade de traços do	Constante de calibração do filme
(0,03 g H ₃ BO ₃ / ℓ H ₂ O)	filme fino de boro (10 ⁶ cm ⁻²)	fino de boro, K _B (10 ¹⁵ cm ⁻²)
400°C	$2,21 \pm 0,01$	$1,06 \pm 0,04$
400°C	$2,22 \pm 0,01$	$1,06 \pm 0,04$
750°C	$2,83 \pm 0,02$	$1,36 \pm 0,05$
750°C	$2,87\pm0,02$	$1,\!38\pm0,\!05$
750°C	$2{,}78\pm0{,}02$	$1,33\pm0,05$

Tabela 6: Valores de densidade superficial de traços provenientes das partículas resultantes das interações entre os filmes finos de boro confeccionados por CSD e os nêutrons incidentes e as respectivas constantes de calibração para cada um desses filmes finos. Deve-se notar que somente o filme fino confeccionado com solução de ácido bórico de concentração 0,03 g H₃BO₃ / ℓ H₂O foi calibrado, pois apenas este foi irradiado com nêutrons na presença do filme fino de urânio de referência.

4.3.2. Sputtering

Para os filmes finos de boro confeccionados por deposição por *sputtering*, os valores das densidades superficiais de traços de cada filme fino de boro (ρ_B) e suas respectivas constantes de calibração (K_B) são mostrados na Tabela 7.

Tempo de deposição por	Densidade de traços do filme	Constante de calibração do filme
sputtering (minutos)	fino de boro (10 ⁶ cm ⁻²)	fino de boro, K _B (10 ¹⁵ cm ⁻²)
5	$0,36 \pm 0,01$	$1,\!69\pm0,\!07$
15	$1,57\pm0,02$	$7,\!30\pm0,\!30$
25	$2,\!47 \pm 0,\!03$	$11,\!48 \pm 0,\!47$

Tabela 7: Valores de densidade superficial de traços provenientes das partículas resultantes das interações entre os filmes finos de boro confeccionados por sputtering e os nêutrons incidentes e as respectivas constantes de calibração para cada um desses filmes finos.

4.4. Medida da taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$

A partir das densidades superficiais de traços resultantes da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ (ρ_B) e das constantes de calibração de cada filme fino de boro (K_B), é possível então, da Equação (22), calcular a taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$, ou seja, calcular quantos nêutrons incidentes são necessários para induzir um evento de captura de nêutron pelo ${}^{10}B$.

Para os filmes finos confeccionados por CSD, a taxa obtida é R = $(2,09 \pm 0,08).10^{-9}$ decaimentos por núcleo de ¹⁰B alvo e para os filmes finos de boro confeccionados por deposição por *sputtering*, a taxa calculada é R = $(2,15 \pm 0,16).10^{-10}$ decaimentos por núcleo de ¹⁰B alvo.

Deve-se notar que o tempo de irradiação com nêutrons para os filmes finos confeccionados por *sputtering* foi seis vezes menor que o tempo de irradiação dos filmes finos confeccionados por CSD (10 minutos e 60 minutos, respectivamente), como pode ser observado na Tabela 2. Com isso, a fluência de nêutrons incidentes nos filmes finos confeccionados por *sputtering* é menor e a isto se deve a diferença de uma ordem de grandeza nos valores de taxa encontrados.

CAPÍTULO 5

Discussões

5.1. Confecção de filmes finos de boro

Com os métodos para confecção de filme finos escolhidos, CSD e deposição por *sputtering*, pretende-se obter filmes finos de boro espacialmente homogêneos. É importante notar que foi possível confeccionar filmes finos de boro (depositar átomos de ¹⁰B sobre os substratos) por ambos os métodos escolhidos, pois se observa maiores densidades de traços nas superfícies dos detectores CR-39 que estavam em contato com os filmes finos de boro durante as irradiações com nêutrons.

Com relação à homogeneidade espacial, para o primeiro método escolhido, CSD, foi observado que os filmes finos de boro de aproximadamente 4 cm² não apresentaram uma distribuição uniforme de átomos de boro sobre sua superfície: os *P-values* encontrados para toda a superfície de cada um dos filme finos são menores que 0,05.

A deposição uniforme de uma solução química depende principalmente de dois fatores: a homogeneidade da solução e a velocidade de derramamento desta solução sobre o substrato. O derramamento da solução dentro da piscina (construída sobre o substrato) deve ser extremamente cuidadoso: deve ser rápido o suficiente para que o éter e o álcool etílico presentes na solução não

evaporem durante o processo, fazendo com que a solução vá secando e se tornando plástica ainda durante o derramamento e deve ser lento o suficiente para a solução se espalhar sobre a área da piscina sem que vaze pelas bordas. Além disso, a mesa sobre a qual a deposição será realizada deve estar muito bem nivelada; e como já dito anteriormente, as bordas dos filmes finos confeccionados por CSD devem ser desconsideradas.

Entretanto, como os filmes finos foram depositados sobre lâminas grandes de mica muscovita, cada um deles pode ser cortado ainda em quatro regiões de cerca de 1 cm² e cada uma dessas regiões pode ser avaliada quanto à homogeneidade. Os resultados obtidos se encontram na Tabela 3. É possível notar que a maioria dessas regiões menores apresenta *P-values* maiores que 0,05.

Do Capítulo 2, têm-se que o teste do χ^2 depende fortemente do erro associado a cada medida, que, para os dados apresentados, são pequenos devido ao grande número de traços contados em cada uma dessas regiões. Com isso, o teste se torna muito rigoroso, resultando em *P-values* que não representam tão bem a região analisada, pois provavelmente são subestimados.

Com relação ao filme fino de boro que foi confeccionado pela deposição de solução de concentração de 0,29 g $H_3BO_3 / \ell H_2O$, obteve-se para todas as quatro regiões *P-values* menores do que 0,05. Isso pode ter ocorrido devido ao fato de que para este filme em particular, o derramamento da solução não foi adequado, tendo de se repetir o processo após a limpeza do substrato. Assim, além de se ter uma deposição não homogênea, depositou-se mais átomos de boro do que o esperado, como pode ser observado ao se comparar os valores de densidades superficiais de traços para os filmes de concentração de 0,29 g $H_3BO_3 / \ell H_2O$ e de 2,99 g $H_3BO_3 / \ell H_2O$; era esperado que houvesse mais traços para o filme fino confeccionado com deposição de solução de maior concentração de ácido bórico.

Com relação às temperaturas escolhidas para se aquecer os filmes finos de boro, 400°C e 750°C, a única diferença esperada era a maior evaporação de átomos de hidrogênio (transformação total do

ácido em óxido); assim, a quantidade de boro depositada deve ser a mesma, já que a concentração da solução utilizada foi a mesma. Porém, como pode ser observado, o pedaço do filme fino de boro que foi aquecido a 750°C apresenta maiores valores de densidades superficiais de traços que o pedaço do filme fino que foi aquecido a 400°C. Isso pode ter acontecido devido à deposição não uniforme no filme fino como um todo, ou seja, a região que foi aquecida a 750°C deve ter sido uma região de maior deposição de boro quando se observando toda a área de 4 cm² do filme fino depositado com solução de concentração de 0,03 g H₃BO₃ / ℓ H₂O, ou ainda pode ser uma conseqüência da variação do ataque químico.

Já com relação aos filmes finos de boro depositados por *sputtering*, os *P-values* encontrados são maiores que 0,05, exceto pelo filme fino cujo crescimento se deu por apenas 5 minutos (Tabela 4). Apesar de este método de deposição de filme fino ser aparentemente menos sujeito a ações do pesquisador que a confecção por CSD, cuidados com relação ao posicionamento do substrato no porta-amostras são fundamentais, já que devem estar em contato de forma que o substrato esteja todo à mesma temperatura (o porta-amostra é aquecido e o substrato entra em equilíbrio térmico através do contato superficial), pois os átomos devem se fixar melhor na região de maior temperatura.

Para estes filmes finos de boro, os erros associados às medidas de densidade superficial de traços também são pequenos, devido ao grande número de traços contados, o que pode resultar em um teste de χ^2 mais rigoroso, subestimando-se o *P-value*. Além disso, especificamente para o filme fino depositado por 5 minutos, temos a possibilidade de que com o curto tempo de crescimento o filme fino ainda estivesse na fase de crescimento das ilhas de átomos (como descrito no Capítulo 3).

É interessante notar que há uma linearidade nas densidades superficiais de traços em função do intervalo de tempo de crescimento dos filmes finos no caso da deposição por *sputtering*.

5.2. Calibrações dos detectores CR-39 e dos filmes finos de boro e medida da taxa da reação ¹⁰B(n,α)⁷Li

O método utilizado para calibrar os detectores CR-39 e os filmes finos de boro depende de monitores das componentes térmica, epitérmica e rápida do feixe de nêutrons (filmes finos de urânio e de tório), pois não se tem o espectro de energia, na posição de irradiação, do feixe utilizado. Com isto, ao invés de se resolver numericamente as integrais $\int_0^{\infty} \frac{d\sigma_i(E)}{dE} \varphi(E) dE$, é necessário se fazer hipóteses e aproximações usando valores médios de seção de choque para cada uma das três componentes energéticas do feixe de nêutrons.

Observou-se que a fluência de nêutrons térmicos, medida com filme fino de urânio é duas vezes maior que o valor fornecido pela medida com o uso de folha de ouro (medição e análise feita pelo grupo da linha de BNCT do IPEN). Este fator pode ser explicado pela diferença da posição das medidas: o filme fino de urânio se localiza junto com a montagem de filme fino de boro acoplado ao detector CR-39 e a folha de ouro é colocada atrás da posição de irradiação, com uma distância de alguns centímetros. Sabe-se que há um gradiente de fluxo ao longo do percurso longitudinal do feixe, devido a sua abertura angular (não apresenta características de feixe paralelo). Assim, pode ser esperado que os valores de fluxo de nêutrons incidentes em cada uma dessas diferentes posições de medida sejam diferentes.

As constantes de calibração obtidas para cada um dos detectores CR-39 são próximas (Tabela 5), exceto pelo segundo detector listado, cuja diferença pode ser explicada pela variação no ataque químico (Figura 19). Era esperado que todas as constantes obtidas fossem aproximadamente próximas, já que dependem somente das reações entre os nêutrons e os elementos constituintes desse detector. É importante lembrar que a constante de calibração do detector (K_{CR-39}) contém a informação de como cada uma das quantidades de cada elemento do CR-39 interage com os nêutrons (aqui se assumiu
somente as interações com nêutrons rápidos) e também a eficiência de detecção de cada traço gerado por tais reações, que depende da detecção, revelação e observação do traço. Obteve-se, neste trabalho, $K_{CR-39} = (4,86 \pm 0,64).10^{-6}$, o que quer dizer que ocorre 1 evento no detector CR-39 para aproximadamente 2.10^5 nêutrons rápidos incidentes.

Com relação às calibrações dos filmes finos de boro, só é possível calibrar aqueles que foram irradiados com filme fino de urânio e os valores obtidos para cada constante (de cada filme fino de boro) são mostrados nas Tabelas 6 e 7.

Ao contrário do caso da constante K_{CR-39} , na qual também há a informação de seção de choque embutida, já que são vários elementos interagindo de diversas maneiras (espalhamento, captura) com os nêutrons, as constantes de calibração dos filmes finos de boro (K_B) dependem somente da quantidade de átomos de boro presentes em cada filme fino e da eficiência de detecção dos traços provenientes dos eventos resultantes da irradiação com nêutrons (térmicos, principalmente).

As ordens de grandeza encontradas para as constantes K_B foram de 10¹⁵ cm⁻², o que indica que as quantidades de boro depositadas em cada um dos filmes finos (confeccionados pelos dois diferentes métodos) não diferem mais do que uma ordem de grandeza (assume-se que as eficiências de detecção, revelação e observação sejam as mesmas, já que o detector, o ataque e o observador foram mantidos ao longo do trabalho) e assim os filmes finos de boro devem ter espessuras próximas.

A partir dos valores de K_B obtidos, é possível calcular a taxa da reação de interesse na BNCT, ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$. Tal taxa (R) depende da quantidade de nêutrons térmicos que incidiram no filme fino de boro, ou seja, depende da fluência desses nêutrons, assim, para os filmes finos de boro confeccionados por CSD, que foram irradiados com nêutrons por 60 minutos, obteve-se R = (2,09 ± 0,08).10⁻⁹ decaimentos por núcleo de ${}^{10}B$ alvo e para os filmes finos de boro confeccionados por *sputtering*, que foram irradiados por apenas 10 minutos, a taxa calculada é R = (2,15 ± 0,16).10⁻¹⁰ decaimentos por núcleo de ${}^{10}B$ alvo. Deve-se lembrar que toda a análise, tanto da homogeneidade espacial dos filmes de boro quanto das calibrações, depende fortemente das contagens dos traços observados dos detectores CR-39 e estes foram sub-atacados, pois há grande densidade superficial de traços e não se deseja que os traços se superponham. Com isto, as contagens (manuais) dependem do critério escolhido pelo observador e de sua constância ao longo de todo o trabalho.

CAPÍTULO 6

Conclusões

O trabalho aqui apresentado tinha como principais objetivos a confecção e a calibração de filmes finos de boro e a calibração dos detectores utilizados (CR-39) para a detecção de nêutrons rápidos. Com isto, seria possível desenvolver uma metodologia para quantificar a taxa da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$, que é o princípio físico base da BNCT, e ao mesmo tempo monitorar a contaminação por nêutrons rápidos, responsável por uma dose indesejável no tecido sadio. A medida da taxa da reação de interesse na BNCT é importante para a caracterização do feixe de nêutrons e para que seja possível analisar a biodistribuição de átomos de ${}^{10}B$ e realizar estudos microdosimétricos em sistemas biológicos, que são etapas fundamentais para o planejamento da terapia em si.

Foram escolhidos dois métodos de confecção de filmes finos, a CSD e a deposição por *sputtering*, e ambos os procedimentos deveriam resultar em filmes finos com distribuição superficial de átomos de boro uniforme. A homogeneidade espacial é necessária para que as contagens dos eventos resultantes das interações entre nêutrons e os átomos de boro presentes no filme fino não sofram influência da distribuição desses átomos, já que as calibrações dos filmes finos de boro e conseqüente medida da taxa da reação de interesse dependem das densidades superficiais dos traços contados nos detectores CR-39.

Para a análise da homogeneidade dos filmes finos de boro, foi aplicado o teste do χ^2 a histogramas tridimensionais que representam as distribuições das contagens dos traços das partículas α e íons de ⁷Li e com isto foi possível calcular *P-values* para os filme finos de boro confeccionados. O teste aplicado depende fortemente das incertezas associadas a cada medida (no caso, às contagens dos traços) e assim, como estas incertezas são pequenas devido à boa estatística de contagem, o teste se torna rigoroso e os valores obtidos podem não representar exatamente as regiões estudadas. Apesar disto, os valores obtidos são em geral maiores que 0,05 (Tabelas 3 e 4), o que indica que os métodos utilizados para confeccionar os filmes finos de boro resultam em deposições uniformes de átomos de ¹⁰B sobre os substratos escolhidos.

Com relação às calibrações, tanto dos detectores CR-39 quanto dos filmes finos de boro, a metodologia utilizada depende do uso de filmes finos de tório e urânio como monitores das componentes rápida e térmica do fluxo de nêutrons incidentes, respectivamente. Isto se dá, pois o espectro de energia dos nêutrons incidentes não é conhecido e então é conveniente dividi-lo em três regiões (térmica, epitérmica e rápida), às quais são relacionados valores de seção de choque médios para as reações de interesse em cada caso (CR-39 e filmes finos de boro). Com a contagem de traços observados nos detectores CR-39, calcula-se densidades superficiais de traços, que são relacionadas às quantidades de eventos resultantes das interações entre os nêutrons e os elementos alvos (ρ_{CR-39}).

Com a utilização de um filme fino de tório é possível obter a componente rápida da fluência de nêutrons e então calibrar os detectores CR-39 utilizados, já que seus elementos interagem principalmente com nêutrons rápidos. Assim, a constante de calibração do detector CR-39 (K_{CR-39}) reflete a quantidade de átomos de hidrogênio, carbono e oxigênio (elementos que compõem o detector) que interagiram de diversos modos (espalhamentos, captura) com os nêutrons rápidos incidentes (as eficiências de detecção para cada partícula resultante de cada uma dessas reações também são englobadas por esta constante). Nota-se que a constante K_{CR-39} não deve depender do filme fino de boro

nem do tempo de irradiação.

Para calibrar os filmes finos de boro, que interagem principalmente com nêutrons térmicos, é necessário utilizar um filme fino de urânio como monitor desta componente energética. Com a contagem de traços referentes somente às interações entre átomos de boro e nêutrons, que podem ser observados nos detectores CR-39, calcula-se densidades superficiais ρ_B . Com esses valores de densidades (Tabelas 6 e 7), são obtidas as constantes de calibração de cada filme fino de boro (K_B), que representam a quantidade de átomos de ¹⁰B que interagiram com os nêutrons térmicos (além da eficiência de detecção) e assim é possível quantificar a taxa da reação ¹⁰B(n, α)⁷Li, que indica quantos nêutrons foram necessários para induzir um evento de captura de nêutron pelo ¹⁰B e, portanto, depende do tempo de irradiação, como foi observado.

É importante notar que todos os resultados aqui apresentados dependem da observação e contagem (não automatizada) dos traços nos detectores CR-39, ou seja, como o ataque químico dos detectores (para a revelação dos traços) foi realizado por um intervalo de tempo menor do que o padrão e como as densidades superficiais de traços encontradas são elevadas, foi necessário se estabelecer um critério de contagem desses traços, que não deveria ser alterado ao longo de todas essas contagens. Com isto, é necessário tentar diminuir as espessuras dos filmes finos de boro e aumentar o tempo de ataque químico dos detectores, para que as contagens possam ser menos subjetivas e que os resultados não estejam sujeitos a variações de observação dos traços.

Com este trabalho, foi possível confeccionar filmes finos de boro que, por serem espacialmente homogêneos, podem ser utilizados para caracterização do feixe de nêutrons incidente, análises de biodistribuição de ¹⁰B e com o auxílio dos detectores CR-39, realizar estudos microdosimétricos, já que foi possível observar traços de partículas provenientes das interações dos nêutrons com o detector.

6.1. Próximas etapas deste trabalho

Para que seja efetivamente possível utilizar os filmes finos de boro durante irradiações de tecidos com nêutrons, pretende-se utilizar mais extensivamente o método de deposição por *sputtering*. Porém os filmes serão crescidos sobre substratos de alumínio e de mica muscovita, pois ao se irradiar o aço inox, seus átomos de ferro interagem com os nêutrons com conseqüente emissão de raios γ , que causa danos às células e tecidos.

Além disso, pretende-se caracterizar mais sistematicamente os filmes finos de boro confeccionados, ou seja, determinar que elementos foram depositados e em quais proporções; isto deve ser realizado por análises de interferometria e de XPS, por exemplo.

Com relação ao método de calibração dos filmes finos de boro e dos detectores CR-39, deve-se buscar realizar a caracterização da linha de BNCT do reator nuclear IEA-R1 do IPEN e com isto, desenvolver uma calibração que seja independente do uso de filmes finos de urânio e de tório como monitores das componentes energéticas do feixe de nêutrons.

6.2. Futuras aplicações deste trabalho

A partir do método de calibração desenvolvido neste trabalho, pode-se estudar a equivalência entre o detector CR-39 e células e tecidos humanos, já que as composições químicas desses materiais são próximas, como pode ser visto na Tabela 8.

Elemento	Pele humana	Detector CR-39
hidrogênio	61,7%	49,7%
carbono	13,0%	32,4%
oxigênio	23,1%	17,9%
nitrogênio	2,0%	0%
outros	0,2%	0%

Tabela 8: Comparação entre a composição atômica da pele humana e do CR-39.

Para tanto, deve-se analisar a atividade no material biológico (por unidade de volume), que aqui chamamos de A_{biológica}. Como visto na Tabela 8, o detector CR-39 possui em sua composição átomos de carbono, hidrogênio e oxigênio, assim, para que seja possível comparar os resultados obtidos para o CR-39 com os resultados para sistemas biológicos, devemos inserir a contribuição das interações entre nêutrons e nitrogênio, que é um elemento presente em células e tecidos:

$$A_{\text{biológica}} = N_{\text{N}} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma^{\text{N}}(E)}{dE} \phi(E) dE + \sum_{i=1}^{3} N'_{\text{CR-39}}^{i} \varepsilon'_{\text{CR-39}}^{i} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{i}^{\text{CR-39}}(E)}{dE} \phi(E) dE$$
(23)

onde o segundo termo da Equação 23 se diferencia da expressão para a densidade superficial de traços observados no detector CR-39, ρ_{CR-39} , (Equação 11) por constantes de proporcionalidade (g_i) que representam as quantidades de cada elemento *i* (C, H e O) no sistema biológico e no detector CR-39:

$$A_{\text{biológica}} = N_{\text{N}} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma^{\text{N}}(E)}{dE} \phi(E) dE + \sum_{i=1}^{3} g_{i} N_{\text{CR}-39}^{i} \varepsilon_{\text{CR}-39}^{i} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{i}^{\text{CR}-39}(E)}{dE} \phi(E) dE$$
(24)

Além disso, é preciso notar que a atividade $A_{biológica}$ é dada por unidade de volume e que a densidade ρ_{CR-39} é dada em cm⁻², o que leva à introdução de um fator de correção geométrica, G:

$$A_{\text{biológica}} = N_{\text{N}} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma^{\text{N}}(E)}{dE} \phi(E) dE + G \sum_{i=1}^{3} g_{i} N_{\text{CR}-39}^{i} \varepsilon_{\text{CR}-39}^{i} \int_{0}^{\infty} \frac{d\sigma_{i}^{\text{CR}-39}(E)}{dE} \phi(E) dE$$
(25)

Finalmente, sabendo-se que a contribuição da reação de nêutrons com o nitrogênio, ¹⁴N(n,p)¹⁴C, é devida principalmente aos nêutrons térmicos (como pode ser observado na Figura 4), pode-se escrever:

$$A_{biológica} = N_N \overline{\sigma}_{t\acute{r}mico}^N \phi_{t\acute{r}mico} + Gg \rho_{CR-39}$$
(26)

Assim, podem ser realizados estudos microdosimétricos em BNCT com o uso de detectores CR-39 e filmes finos de boro, já que com esta metodologia analisam-se as contribuições de cada componente de irradiação em dimensões de micrômetros, além de com a irradiação concomitante de células (e tecidos) e filmes finos de boro, ser possível estudar a biodistribuição de átomos de ¹⁰B e, conseqüentemente, iniciar o planejamento da terapia em si.

APÊNDICE A

Cálculo da quantidade de átomos de ¹⁰B que devem estar presentes em tumores para a utilização da BNCT

Definindo-se o número de eventos resultantes da reação ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ (N_{α}) como o número de partículas α emitidas em função da quantidade de átomos de ${}^{10}B$ (N_{10_B}) que irão interagir com nêutrons, pode-se escrever:

$$N_{\alpha} = N_{10_B} \sigma_{10_B} \varphi \tag{27}$$

onde a seção de choque de captura de nêutrons pelo ¹⁰B (σ_{10_B}) multiplicada pela fluência de nêutrons incidentes (ϕ) representa a porcentagem de átomos de ¹⁰B presentes que interagem com nêutrons e resultam em partículas α .

Supondo que cada evento ${}^{10}B(n,\alpha)^7$ Li danifica uma célula tumoral, pode-se escrever:

$$\frac{N_{\alpha}}{N_{tumor}} = \frac{N_{10_B}}{N_{tumor}} \sigma_{10_B} \varphi \tag{28}$$

Para uma terapia que utiliza um fluxo de aproximadamente 10^9 nêutrons.cm⁻².s⁻¹ por 15 minutos, determina-se que são necessários cerca de 3.10^8 átomos de ¹⁰B por célula tumoral. O valor adotado é da ordem de 10^9 átomos de ¹⁰B por célula tumoral (20 ppm).

APÊNDICE B

Seções de choque de fissão induzida por nêutrons para urânio e tório

O método de calibração dos detectores CR-39 e dos filmes finos de boro utilizado neste trabalho (descrito no Capítulo 2) faz uso de monitores das componentes térmica, epitérmica e rápida do feixe de nêutrons utilizado para irradiar as montagens.

Para calibrar os detectores CR-39, é necessário que seja utilizado um filme fino de tório previamente calibrado, pois as reações de espalhamento e captura que ocorrem entre os elementos que compõem os detectores (hidrogênio, carbono e oxigênio) e o feixe de nêutrons incidente são induzidas pela componente rápida do fluxo de nêutrons e o tório natural utilizado na confecção do filme fino, que é composto somente pelo isótopo ²³²Th, terá fissões induzidas por nêutrons rápidos.

Para a calibração dos filmes finos de boro, que interagem principalmente com nêutrons térmicos, é necessário que seja utilizado um filme fino de urânio previamente calibrado, confeccionado utilizando-se urânio natural, cujos isótopos presentes são o ²³⁵U (0,72%) e ²³⁸U (99,28%) e que têm fissões induzidas principalmente por nêutrons térmicos e epitérmicos, respectivamente.

As seções de choque de fissão induzida por nêutrons para os três isótopos de interesse são mostradas na Figura 20 (valores de seção de choque obtidos na base de dados ENDF/B VII.0). Nota-se que ambos os isótopos ²³⁵U e ²³⁸U apresentam ressonância na região de nêutrons epitérmicos e que o isótopo ²³²Th só tem fissões induzidas para nêutrons rápidos.



Figura 20: Seções de choque de fissão induzida por nêutrons para ²³²Th, ²³⁵U e ²³⁸U.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

Altieri, S., Bortolussi, S., Bruschi, P., Chiari, P., Fossati, F., Stella, S., Prati, U., Roveda, L., Zonta, A., Zonta, C., Ferrari, C., Clerici, A., Nano, R., Pinelli, T., "Neutron autoradiography imaging of selective boron uptake in human metastatic tumours", *Appl. Radiat. Isot.* **66**: 1850-1855 (2008)

Attix, F.H., "Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry", Wiley-VCH, Germany (2004)

Ballarini, F., Bakeine, J.G., Bortolussi, S., Bruschi, P., Clerici, A.M., De Bari, A., Dionigi, P., Ferrari, C., Gadan, M.A., Protti, N., Stella, S., Zonta, C., Altieri, S., "Nuclear Physics meets Medicine and Biology: Boron Neutron Capture Therapy", *In: 12th ICNRM*, 561-571 (2009)

Barth, R.F., Solloway, A.H., Fairchild, R.G., "Boron Neutron Capture Therapy of Cancer", *Cancer Res.*, **50**: 1061-1070, (1990)

Barth, R., Coderre, J.A., Vicente, M.G.H., Blue, T.E., "Boron Neutron Capture Therapy of Cancer: Current status and future prospects", *Clin. Cancer Res.* **11**: 3987-4002 (2005)

Bigazzi, G., Hadler, J.C., Iunes, P.J., "Mineral Dating by the Fission Track Method: Neutron Dosimetry by Thin Film of Natural Uranium", *Revista de Física Aplicada e Instrumentação* **8**, 13-23 (1993)

Bigazzi, G., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Mello, T.C.W.P., Navia, L.M.S., Paulo, S.R., Zúñiga, A., "Employment Of Thin Thorium Films In Fission Track Neutron Dosimetry", *Brazilian Journal of Physics*, 246-251 (1995) Bigazzi, G., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Oddone, M., Paulo, S.R., Zúñiga, A., "Absolute thermal neutron fluence determination by thin film of natural uranium", *Nucl. Instrum. Meth. in Phys. Res.* A352, 588-591 (1995)

Bigazzi, G., Guedes, S., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Oddone, M., Osorio, A.M., Paulo, S.R., Zúñiga, A., "Potentialities and practical limitations of an absolute neutron dosimetry using thin films of uranium and thorium applied to the Fission Track Method", *Radiat. Meas.* **31**, 651-656 (1999)

Brownell, G., Zamenhof, R.G., Murray, B.W., Wellum, G.R., "Boron Neutron Capture Therapy", In: *Therapy in Nuclear Medicine*, R.P. Spencer (ed.), Grune and Stratton, Inc., New York, (1978)

Chapman, B.N., "Glow Discharge Processes", John Wiley & Sons Inc., USA (1980)

Behrisch, R., "Sputtering by Particle Bombardment I: Physical Sputtering of Single-Element Solids", *Springer, Berlin.* ISBN 3540105212 (1981)

Coderre, J.A., Morris, G.M., "The radiation biology of Boron Neutron Capture Therapy", *Radiat. Res.* **151**: 1-18 (1999)

Deevband, M.R., Abdolmaleki, P., Kardan, M.R., Khosravi, H.R., Taheri, M., "An investigation on the response of PADC detectors to neutrons", *Appl. Radiat. Isot.* **69**, 340-345 (2011)

Durham, J.S., Blue, T.E., Wehring, B.W., Ragheb, M.H., Blue, J.W., "Microdosimetry in fast-neutron therapy by automatic readout of CR-39 solid state nuclear track detectors", *Nuc. Instr. Meth. Phys. Res.* **B36**, 319-331 (1989)

d'Utra Bitelli, U., Martins, F.P.G., Jerez, R., "Measurements of the neutron spectrum energy in the IPEN/MB-01 reactor core", *Braz. J. Phys.* vol. 39 no. 1 (2009)

Evaluated Nuclear Data File (ENDF) at Nuclear Data Services, International Atomic Energy

Faião-Flores, F., Coelho, P.R.P., Arruda-Neto, J., Maria, D.A., "Boron neutron capture therapy induces cell cycle arrest and DNA fragmentation in murine melanoma cells", *Appl. Radiat. And Isot.* **69**: 1741-1744 (2011a)

Faião-Flores, F., Coelho, P.R.P., Muniz, R.O.R., Souza, G.S., Arruda-Neto, J., Maria, D.A., "Antitumor potential induction and free radicals production in melanoma cells by Boron Neutron Capture Therapy", *Appl. Radiat. And Isot.* **69**: 1748-1751 (2011b)

Farr, L.E., Sweet, W.H., Robertson, J.S., "Neutron capture therapy with boron in the treatment of glioblastoma multiforme", *Am. J. Roentgenol*, **71**: 279-91 (1954)

Garabalino, M.A., Monti Hughes, A., Molinari, A.J., Heber, E.M., Pozzi, E.C., Cardoso, J.E., Colombo, L.L., Nievas, S., Nigg, D.W., Aromando, R.F., Itoiz, M.E., Trivillin, V.A., Schwint, A.E., "Boron neutron capture therapy (BNCT) for treatment of liver metastases: biodistribution of boron compounds in an experimental model", *Radiat. Environ. Biophys.* **50**: 199-207 (2011)

Glascock, M.D., "An Overview to Neutron Activation Analysis"

Godwin, J.T., Farr, L.E., Sweet, W.H., Robertson, J.S., "Path-ological study of eight patients with glioblastoma multiforme treated by neutron-capture therapy using boron 10", *Cancer*, **8**: 601-15 (1955)

Guedes, S., "Duas novas determinações da constante de decaimento por fissão espontânea do ²³⁸U, λ_f , utilizando-se técnicas de traços de fissão", *Tese de Doutorado, IFGW, Unicamp* (2001)

International Commision on Radiation Units ans Measurements, Report 86 (2011)

Iunes, P.J., "Datação com o método dos traços de fissão: estudo da dosimetria de nêutrons com filmes fions de urânio natural", *Dissertação de Mestrado, IFGW, Unicamp* (1990)

Iunes, P.J., Hadler, J.C., Bigazzi, G., Guedes, S., Zúñiga, A., Paulo, S.R., Tello S., C.A., "Uranium and thorium thin film calibrations by particle track techniques", *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry (Print)*, 461-468 (2004)

Locher, G.L., "Biological Effects and Therapeutic Possibilities of Neutrons", *Am. J. Roentgenol. Radium Ther.*, **36**: 1-13, (1936)

Nikezic, D., Yu, K.N., "Formation and growth of tracks in nuclear track materials", *Materials Science and Engineering* **R46**: 51–123 (2004)

Ogura, K., Yanagie, H., Eriguchi, M., Lehmann, E.H., Kühne, G., Bayon, G., Kobayashi, H., "Neutron capture autoradiography study of the biodistribution of ¹⁰B in tumor bearing mice", *Appl. Radiat. Isot.* **61**: 585-590 (2004)

Shaw, E., Seiferheld, W., Scott, C., Coughlin, C., Leibel, S., Curran, W., Mehta, M., "Reexamining the radiation therapy oncology group (RTOG) recursive partitioning analysis (RPA) for glioblastoma multiforme (GBM) patients", *International Journal of Radiation Oncology Biology Physics* **57**: 135–6 (2003)

Smilgys, B., Guedes, S., Hadler, J.C., Coelho, P.R.P., Alencar, I., Soares, C.J., Salim, L.A., "Manufacturing of boron thin films for the measurement of the ${}^{10}B(n,\alpha)^7Li$ reaction in BNCT", *Proceedings of Science, XXXIV BWNP* (2011)

Smilgys, B., Guedes S., Morales, M., Alvarez, F., Pinto, P.R.C., Siqueira, P.T.D., Soares, C.J., Alencar, I., Curvo, E.A.C., Hadler, J.C., "Boron thin films and CR-39 detectors in BNCT: a way to measure the ${}^{10}B(n,\alpha)^{7}Li$ reaction rate", *Radiat. Meas.* (2011, submetido)

Sweet, W.H., "The Use of Nuclear Desintegrations in the Diagnosis and Treatment of Brain Tumor", *N. Engl. J. Med.*, **245**: 875-878, (1951)

Sweet, W.H., Javid, M., "The possible Use of Neutron-capturing Isotopes such as boron-10 in the treatment of neoplasms", *I. Intracranial Tumors, J. Neurosurg.*, **9**: 200-209, (1952)

Sweet, W.H., "Early history of development of boron neutron capture therapy of tumors", J. Neurooncol., 33: 19-26 (1997)

The Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM), software disponível em http://www.srim.org/

Turner, J.E., "Atoms, Radiation and Radiation Protection", Wiley, online. ISBN 3527616978 (2007)

Wagner, G.A., Van den Haute, P., "Fission-track dating", Kluwer Acad. Publ. (1992)

Yagoda, H., "Radioactive measurements with nuclear emulsions", John Wiley & Sons Inc., USA (1949)