

Estudo da redução nos limites de detecção de detectores de traços utilizados na medida da taxa de reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ através de experimentos de annealing e ataque químico

Study of the reduction in detection limits of track detectors used for $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ reaction rate measure through annealing and chemical etching experiments

Herminiane L. Vasconcellos¹, Bárbara Smilgys¹, Vinicius A. Castro² e Sandro Guedes¹

¹Instituto de Física "Gleb Wataghin", Universidade Estadual de Campinas (Unicamp) – Campinas (SP), Brasil.

²Centro de Engenharia Nuclear (CEN), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) – São Paulo (SP), Brasil.

Resumo

A Terapia de Captura de Nêutrons pelo Boro (BNCT do inglês *Boron Neutron Capture Therapy*) é um método experimental de radioterapia para tratamento de câncer. É baseada na taxa de reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ que pode ser medida através de detectores de traços, capazes de registrar eventos que incidem sobre estes. Com este registro, é possível determinar o número de partículas alfa e núcleos de Lítio-7 de recuo, produtos da reação e, em última etapa, a qual dose de radiação um paciente será exposto. Neste trabalho foram caracterizados os detectores PADC, irradiados no reator IEA-R1 IPEN/CNEN a fim de avaliar a contribuição da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ e prótons provenientes de reações de espalhamento de nêutrons rápidos com os elementos que compõe o tecido. Com o objetivo de reduzir esse fundo proveniente dos prótons, os detectores foram submetidos a experimentos de aquecimento a 80°C entre 0 e 100 horas. Isso foi feito com o intuito de restaurar parcialmente a estrutura modificada do detector, causando redução nas dimensões e na densidade de traços, efeito conhecido como *annealing*. Para visualização dos traços em microscópio, foram feitos três ataques químicos de hidróxido de sódio (NaOH) por 30, 60 e 90 minutos. Constatou-se a redução na densidade de traços alcançando um *plateau* para tempo de aquecimento de 50 horas. Com o ataque químico PEW, em detectores que não foram aquecidos, mostrou-se o mais eficaz na redução de 87% da densidade de traços.

Palavras-chave: instrumentação, calibração, detectores de traços, terapia por captura de nêutron de boro.

Abstract

The Boron Neutron Capture Therapy (BNCT) is an experimental radiotherapy for cancer treatment. It is based on $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ reaction, which can be measured by track detectors capable of recording events that strike them. With this recording, it is possible to determine the number of alpha particles and recoiling Lithium-7 nucleus, reaction products, and from this information, which amount of radiation dose a patient is exposed to. In this work, PADC detectors were characterized, irradiated at the IEA-R1 IPEN/CNEN reactor to assess the contribution of the $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ reaction and protons from fast neutron scattering with the elements that compounds the tissue. With the aim of reducing the proton background, the detectors were subjected to heating experiments at 80°C for periods in the range 0-100 hours. This was done in order to restore partially modified structure of the detector, causing a reduction in the size and density of tracks. This effect is known as *annealing*. For the visualization of tracks at microscope, detectors were made three chemical attacks with sodium hydroxide (NaOH) for 30, 60 and 90 minutes at 70°C. It was observed a reduction in the track density achieving a plateau heating time of 50 hours. For detectors that have not undergone annealing and were etched with another etchant, PEW solution, a reduction of 87% in track density was obtained.

Keywords: instrumentation, calibration, track detectors, boron neutron capture therapy.

Introdução

Quando o Boro-10, um elemento natural, é irradiado com nêutrons térmicos (baixa energia) a reação nuclear resultante é uma partícula alfa de alto *linear energy transfer* (LET) e um íon de recuo Lítio-7. Compostos borados são entregues aos

tecidos em que se deseja tratar, e o local é irradiado com um feixe de nêutrons térmicos para induzir a reação descrita.

A dose recebida nos tecidos sadios e no tumor é proveniente¹ dos produtos da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, $^1\text{H}(n,\gamma)^2\text{H}$, de prótons (resultado do espalhamento de nêutrons rápidos) e da reação ($^{14}\text{N}(n,p)^{14}\text{C}$).

Autor correspondente: Herminiane Luiza de Vasconcellos – Universidade Estadual de Campinas – Instituto de Física "Gleb Wataghin" – Departamento de Raios Cósmicos e Cronologia – Rua Sérgio Buarque de Holanda, 777 – Cidade Universitária Zeferino Vaz – Barão Geraldo – CEP: 13083-859 – Campinas (SP), Brasil – E-mail: hluizav@ifi.unicamp.br

O feixe de nêutrons a ser utilizado na Terapia de Captura de Nêutrons pelo Boro (BNCT) pode ser um feixe de nêutrons térmicos (baixa energia $E < 0,5$ eV) para o caso de tratamentos superficiais, ou um feixe de nêutrons epitérmicos ($0,5 \text{ eV} < E < 10 \text{ keV}$) para tratamentos mais profundos. As componentes de nêutrons rápidos ($E > 10 \text{ keV}$) e raios- γ devem ser controladas. A fluência de nêutrons ideal para BNCT é da ordem de 10^9 cm^{-2} estimada impondo-se que haja uma emissão por célula.

Para a BNCT, onde a dose recebida pelo paciente é proveniente de diversas reações, a distribuição de dose é complicada. Mas como qualquer tipo de tratamento que envolva radiação faz-se necessário estimar a dose recebida, a fim de prever a resposta biológica e, conseqüentemente, o resultado terapêutico. Por isto, é de grande importância conhecer de forma precisa o número de partículas produtos da BNCT e identificar cada componente que contribui para a dose recebida pelo paciente. Esta quantificação pode ser feita através de detectores de traços.

Quando uma partícula carregada pesada incide em um sólido ocorrem interações de forma a perder energia cinética durante seu percurso até parar, causando dano no sólido, chamado traço².

Um detector bastante apropriado para BNCT é o *poly allyl diglycol carbonate* (PADC) que serve como detector de partículas alfa e núcleos de lítio e é, ao mesmo tempo, um bom conversor de nêutrons rápidos e detector das partículas resultantes (basicamente prótons espalhados).

Para ser possível visualizar traços no microscópio, é necessário submeter o detector a um ataque químico. Os reagentes químicos específicos atacam principalmente os danos no detector (traços), o que causa um aumento no tamanho dos traços, especialmente no diâmetro, tornando-os visíveis ao microscópio óptico, possibilitando contagens e medidas. Há um limite superior para a contagem de traços que acontece quando os traços se superpõem, tornando difícil a contagem. Quando usado como monitor de nêutrons, esta saturação limita a fluência a ser monitorada.

Para o reator IEA-R1/IPEN utilizado para este experimento, existe uma contribuição considerável de nêutrons rápidos (alta energia) e raios- γ provenientes do núcleo, indesejados para a terapia. Estes prótons espalhados contribuem para um fundo (*background*) da reação principal $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ e, conseqüentemente, para a dose. Este *background* é considerável já que os tecidos biológicos são ricos em hidrogênio. Experimentos envolvendo aquecimentos (*annealing*) e ataque químico dos detectores foram realizados a fim de verificar a possibilidade de eliminar o fundo de prótons.

O *annealing* é o efeito de redução das dimensões do traço, e conseqüentemente da densidade destes, em função da temperatura e tempo de aquecimento.

Material e Métodos

O detector de traços utilizado foi o PADC com nome comercial CR-39, composto por Hidrogênio, Carbono e Oxigênio ($\text{C}_{12}\text{H}_{17}\text{O}_8$), fabricado por Intercast Europe S.P.A.

Irradiação com nêutrons

Para avaliação da contribuição de nêutrons rápidos, os detectores CR-39, foram irradiados isoladamente no reator IEA-R1/IPEN na linha BNCT. Estes detectores foram envolvidos com papel alumínio e dispostos perpendicularmente ao feixe de nêutrons. O tempo de irradiação dos detectores no reator foi de 10 minutos, sendo o fluxo de nêutrons epitérmicos e rápidos de $(9,11 \pm 0,61) \times 10^7 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$.

Ataque químico

O ataque químico NaOH, padrão para o CR-39 de concentração 6,25 mol/L foi realizado com 50 g de hidróxido de sódio (NaOH) do fabricante Labsinth Produtos para Laboratório diluído em água deionizada, resultando em uma solução final de 200 mL. Esta solução é inserida em um banho térmico a uma temperatura padrão de 70°C e os detectores são imersos na solução durante um tempo determinado variando entre 30 minutos e 90 minutos, neste trabalho.

A solução PEW é uma mistura de 6,25 mol/L com etanol, água e hidróxido de potássio (KOH). As proporções foram elaboradas com 58% de etanol, 11% de KOH e 31% de água deionizada, elementos do fabricante Labsinth Produtos para Laboratório. O tempo de ataque variou entre 60 minutos e 150 minutos, com a temperatura do banho térmico à 70°C³.

Experimentos de aquecimento

A fim de avaliar o fundo de prótons, os detectores foram aquecidos em um forno tubular com temperatura controlada a $(80 \pm 2)^\circ\text{C}$ em intervalos de tempo variando entre 0 e 100 h, e depois, sofreram ataques químicos NaOH por 30, 60 e 90 minutos. Três curvas de densidade de traços versus tempo de aquecimento foram construídas para encontrar o *plateau*.

As imagens para visualização dos traços para o ataque NaOH por 30 minutos foram adquiridas via microscópio de força atômica (AFM) com dimensões de $10 \times 10 \mu\text{m}$, pois não foi possível observar os traços via microscópio ótico. Para os demais ataques, foi possível a aquisição das imagens com dimensões de $50 \times 50 \mu\text{m}$ em microscópio ótico.

Avaliação ataque químico PEW e NaOH

Nesta etapa, foram avaliados os ataques NaOH e PEW, conforme Tabela 1.

Com um novo conjunto de detectores irradiados, a análise de densidade de traços foi realizada. Isso foi feito a fim de avaliar se com o ataque PEW seguido de NaOH pode haver melhora na detecção e “resolução” para partículas de alto LET no CR-39⁴.

Tabela 1. Detectores CR-39 irradiados no IEA-R1 com variação de ataque (PEW e NaOH) e intervalo de tempo para o ataque PEW (t_{PEW}) e NaOH (t_{NaOH}).

CR-39	Annealing	At. Químico	t_{PEW}	t_{NaOH}
1	Não	PEW	90-150 min	-
2	Sim	PEW+NaOH	60 min	30-90min
3	Não	PEW+NaOH	60 min	30-90min
4	Sim	NaOH	-	30-90min

Assim, foram utilizados quatro placas de CR-39 para esta etapa. As combinações estão descritas na Tabela 1 com 50 horas de *annealing* para duas configurações.

Irradiação com fonte de partículas alfa

Dois detectores PADC, previamente irradiados no reator nuclear foram expostos a uma fonte de partículas α (Rádio-226, com fluxo de partículas alfa estimado de $4 \times 10^3 \text{ cm}^{-2}$) por 5s e 15s, a efeito de teste, antes de utilizar as partículas α da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. Com base nas observações alcançadas na etapa anterior foi realizada uma análise do comportamento da variação do número de partículas α para o ataque PEW, para tempos entre 90-150 min de ataque.

Para tanto, foi preciso fazer a diferenciação entre os prótons espalhados, resultado das interações dos nêutrons no detector, das partículas α emitidas pela fonte Ra-226. Visualmente, não é possível identificar traços originados de interações de nêutrons no CR-39 de traços provindos da interação da partícula α no CR-39.

Por isso, para o lado do CR-39 que foi exposto a fonte de Ra-226 ("frente" do CR-39), foram adquiridas 20 imagens via microscópio ótico. Também foram adquiridas imagens do outro lado do CR-39 ("atrás" do CR-39), que só há traços provindos de prótons espalhados (partículas α tem alcance da ordem de μm). Descontando-se a densidade obtida atrás do detector da densidade obtida na frente, obtém-se a densidade de traços de partículas alfa.

Irradiação de detectores CR-39 acoplados a filmes fino de boro

Com os resultados das etapas anteriores foi avaliado o ataque químico PEW com intervalo de 2 a 8 minutos de ataque, sem aquecimento, para detectores CR-39 acoplados a filmes finos de boro⁵.

Resultados

Os resultados obtidos na análise de *annealing*, ataque químico NaOH e PEW estão mostrados nas Figuras 1 e 2, tomando que o comportamento dos dados é atribuído a uma distribuição de Poisson, o erro das medidas é dado pela raiz do número de traços contados.

Na Figura 1, observa-se a redução na densidade de traços em função do tempo de aquecimento para cada tempo de ataque. Além disso, percebe-se que a curva para o maior tempo de ataque (90 minutos) apresenta valores de densidade mais altos comparados ao tempo de 60 minutos, mostrando que o ataque químico NaOH tende a revelar mais traços de acordo com o aumento do tempo de ataque. Esta comparação não pode ser realizada para a curva com tempo de 30 minutos de ataque, pois o instrumento de aquisição das imagens é diferente das demais.

Pela Figura 1, depois de uma queda abrupta na densidade de traços, cada curva possui um *plateau* nas curvas a partir de 10 horas de aquecimento. Escolheu-se um tempo de 50 h como padrão para este procedimento em aplicações práticas.

Na Figura 2, na avaliação dos ataques químicos NaOH e PEW, percebe-se que para todos os arranjos, exceto para o ataque PEW sem *annealing*, a densidade de traços tende a variar (aumentar) de acordo com o aumento de tempo de ataque. Dentre essas configurações, o arranjo ataque químico PEW e sem *annealing* é o mais indicado para ser utilizado nos detectores porque há uma região onde a densidade de traços não varia, tornando a medida independente de possíveis flutuações no ataque.

Na Figura 3 pode-se observar que, com o aumento do tempo de ataque PEW, a densidade de traços tende a diminuir. Isso pode ser compreendido com base nas diversas energias das partículas α da fonte de Ra-226. O ataque químico PEW corrói rapidamente a superfície do detector, eliminando traços de partículas α de menor energia. Para o tempo de ataque de 150 minutos, é provável que a densidade que persiste seja originada dos traços de partículas α de maior energia, que alcançam maior profundidade no detector.

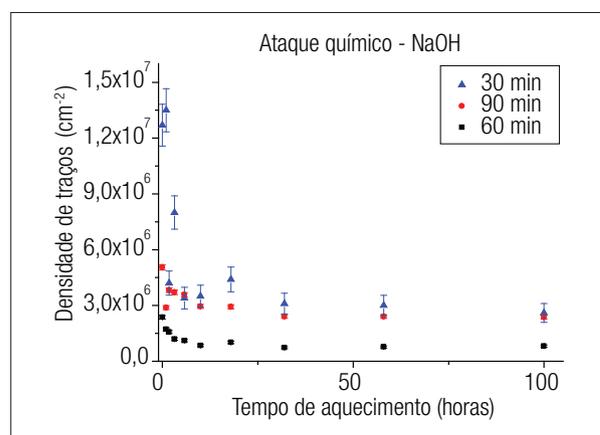


Figura 1. Gráfico de densidade de traços *versus* tempo de aquecimento, para os detectores irradiados no reator e aquecidos (*annealing*). Ataques químicos NaOH de 30, 60, 90 minutos.

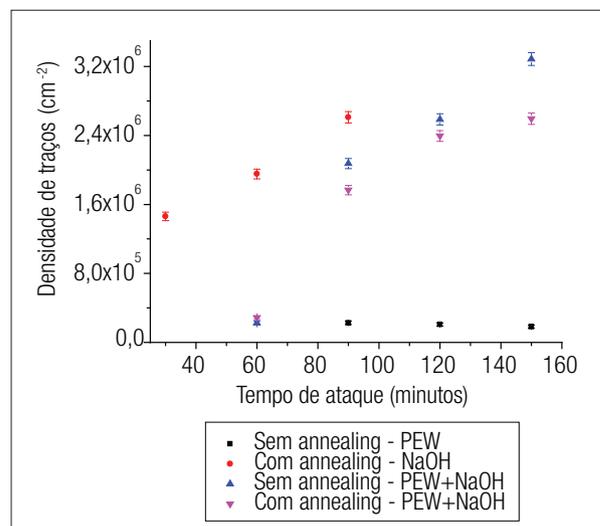


Figura 2. Gráfico de densidade de traços *versus* tempo de ataque químico para diferentes arranjos de ataque químico (PEW e NaOH) e *annealing*.

Com base na análise do experimento com a fonte de Rádio-226, o tempo ideal para detectores CR-39 acoplados a filmes finos de boro (boro depositado via *sputtering*) irradiados foi constatado. Os resultados estão mostrados na Figura 4. O ponto de partida para o intervalo de tempo escolhido para este caso foi menor que o intervalo representado pela Figura 3. Isso porque as partículas α emitidas da fonte de Rádio-226 possuem energia superior a 3.7 MeV.

No caso dos produtos da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, as energias da partícula α e do Li-7 são de 1.47 MeV e 0.84 MeV, respectivamente. Portanto, alcance menor que das partículas alfa da fonte de rádio ($E > 3.7\text{MeV}$). Por isso, se fosse utilizado o mesmo intervalo demonstrado na Figura 3 (90-150 minutos), os traços originados estariam apagados totalmente, o que não é desejado. Nessas circunstâncias, o ponto de partida escolhido foi menor que 8 minutos. Os resultados desta análise são mostrados na Figura 4. O tempo escolhido para ataque PEW, nesta configuração foi de 8 minutos (*plateau*). Embora, para o caso sem filme fino (apenas prótons espalhados), o *plateau* inicia-se a 5 minutos de tempo de ataque,

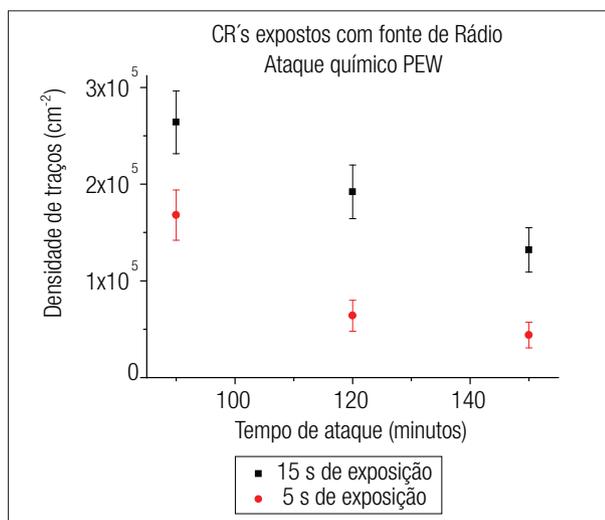


Figura 3. Gráfico da densidade de traços versus tempo de ataque para dois detectores PADC irradiados na linha BNCT do reator nuclear e expostos a uma fonte de Rádio-226.

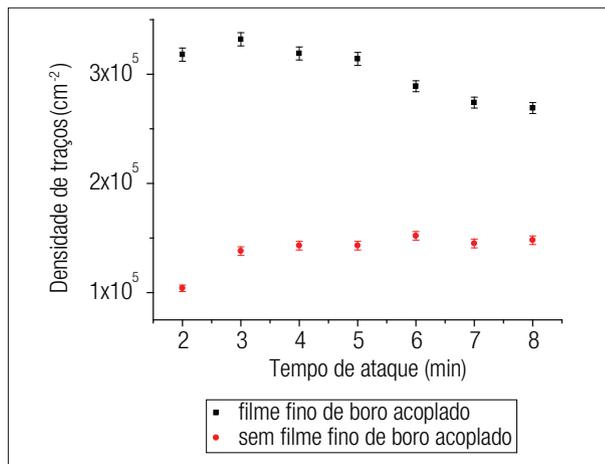


Figura 4. Densidade de traços *versus* tempo de ataque PEW para detectores PADC com e sem filme fino de boro acoplado.

o tempo de 8 minutos é escolhido porque todos os traços são atacados juntos, no mesmo detector.

Discussão e Conclusões

Através das curvas de ataque químico NaOH nos detectores CR-39 irradiados no reator nuclear IEA-R1, foi encontrado o melhor tempo de aquecimento (50 h) que mantém a densidade de traços constante. Neste tempo, foi possível reduzir 53% a densidade de traços de prótons para o ataque químico NaOH de 90 minutos, e de 67% para 60 minutos de ataque, comparados ao detector padrão.

Com o tempo de *annealing* escolhido, a análise dos ataques químico PEW e NaOH, com *annealing* e sem *annealing*, foi feita. Para o ataque PEW+NaOH por 90 minutos sem *annealing*, houve uma redução de 63% comparada ao detector padrão atacado apenas com NaOH (por 90 minutos). Para o mesmo tempo de ataque, houve uma redução de 76% do ataque PEW+NaOH com *annealing*, comparada a densidade de traços do detector padrão.

O ataque químico PEW reduziu a densidade de traços do fundo em 87%, mostrando, dentre os testes feitos, ser o mais efetivo. Com este ataque para os detectores expostos ao Ra-226, o PEW também foi eficaz para a redução de traços de partículas α . Com base nessa redução, foi escolhido o mesmo ataque químico para detectores acoplados a filme fino de boro.

Nesta etapa, foram obtidos resultados satisfatórios na redução de traços da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ da BNCT com tempo ideal de 8 minutos de ataque.

Essa redução significativa torna a avaliação da densidade de traços mais definida podendo diminuir a sobreposição de traços, ao aumentar a fluência de nêutrons incidentes, importante para o estudo da BNCT.

Agradecimentos

Aos responsáveis pelo reator IEA-R1/IPEN/USP que mantêm a linha BNCT e colaboraram com os experimentos deste trabalho.

Referências

- Barth RF, Coderre JA, Vicente MG, Blue TE. Boron Neutron Capture Therapy of cancer: current status and future prospects. *Clin Cancer Res.* 2005;11(11):3987-4002.
- Gunther AW, Haute P. Fission track dating. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers; 1992.
- Fantuzzi E, Morelli B, Falangi G, Patrizi L, Togo V. CR-39 Acceptance Test and Optimisation for Fast Neutron Dosimetry Applications. *Radiat Prot Dosimetry.* 2002;101(1):573-8.
- Kodaira S, Yasuda N, Kawashima H, Kurano M, Naka S, Ota S, et al. Detection threshold control of CR-39 plastic nuclear track detectors for the selective measurement of high LET secondary charged particles. *Radiation Measurements.* 2011;46:1782-85.
- Smilgys B. Confecção e calibração de filmes finos de boro para a medida da taxa da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ na terapia por captura de nêutrons pelo boro. [Dissertação de Mestrado]. Campinas: Instituto de Física Gleb Wataghin da Universidade Estadual de Campinas; 2012.