

Trabalho de Conclusão de Curso

Curso de Graduação em Física

CONFEÇÃO E CARACTERIZAÇÃO DE FILMES FINOS DE BORO PARA A
MEDIDA DA TAXA DE REAÇÃO $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ NA TERAPIA POR CAPTURA DE
NÊUTRONS PELO BORO.

Leonardo Alfredo Salim

Prof. Dr. Dante Luis Chinaglia

Rio Claro (SP)

2011

UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA
Instituto de Geociências e Ciências Exatas
Campus de Rio Claro

Leonardo Alfredo Salim

**CONFECÇÃO E CARACTERIZAÇÃO DE FILMES FINOS DE
BORO PARA A MEDIDA DA TAXA DE REAÇÃO $^{10}\text{B}(\text{N},\alpha)^7\text{Li}$ NA
TERAPIA POR CAPTURA DE NÊUTRONS PELO BORO.**

Trabalho de Conclusão de Curso
apresentado ao Instituto de Geociências e
Ciências Exatas - Campus de Rio Claro,
da Universidade Estadual Paulista Júlio
de Mesquita Filho, para obtenção do grau
de Bacharel em Física.

Rio Claro - SP

2011

531.16 Salim, Leonardo Alfredo
S165c Confecção e caracterização de filmes finos de boro para a medida da taxa de reação $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ na terapia por captura de nêutrons pelo boro. / Leonardo Alfredo Salim. - Rio Claro : [s.n.], 2011
37 f. : il., gráfs., tabs.

Trabalho de conclusão de curso (bacharelado - Bacharel em Física) - Universidade Estadual Paulista, Instituto de Geociências e Ciências Exatas
Orientador: Dante Luis Chinaglia

1. Mecânica de partículas. 2. Física nuclear. 3. Física médica. 4. Detectores de traços nucleares. 5. Câncer. I. Título.

Ficha Catalográfica elaborada pela STATI - Biblioteca da UNESP
Campus de Rio Claro/SP

Dedico este trabalho aos meus pais

Gilson e Rosangela.

AGRADECIMENTOS

Meus sinceros agradecimentos a todas as pessoas que colaboram diretamente e indiretamente para que este trabalho fosse realizado e concluído:

Ao Prof. Dr. Sandro Guedes de Oliveira pela confiança, paciência, estímulo e companheirismo em todos os momentos da realização deste trabalho.

Ao Prof. Dr. Dante Luis Chinaglia pela confiança no meu trabalho.

Aos meus conselheiros e companheiros de laboratório Bárbara, Cleber e Igor, que me ajudaram nos momentos de dificuldades no decorrer do trabalho.

A minha companheira Thais Helena, pelo carinho, apoio, conselhos e por sua presença nos momentos bons e ruins.

Aos meus grandes amigos Vinicius Cardoso e João Henrique, que foram praticamente meus irmãos durante todo tempo da minha graduação. E que sempre serão lembrados.

E principalmente aos meus pais e meus irmãos, pois tudo que conquistei até hoje foi graças à ótima educação que recebi deles, o carinho, o apoio, os conselhos e a amizade.

RESUMO

A Terapia por Captura de Nêutrons pelo Boro (BNCT), baseada na reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, representa uma modalidade promissora para o tratamento de cânceres que apresentam resistência aos tratamentos convencionais. Para isso, é preciso que se encontrem drogas (compostos borados) com alta seletividade para cada tipo de câncer, que a fonte de nêutrons seja bem caracterizada e que a taxa de reação envolvida, $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, seja medida com a maior acurácia possível. Este trabalho buscou desenvolver uma metodologia para a confecção de filmes finos de boro, para medir a reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, e complementarmente foi feita a análise de uniformidade dos filmes. Cinco filmes finos de boro foram confeccionados com três concentrações diferentes de ácido bórico, aquecidos para transformar o ácido em boro, irradiados com nêutrons térmicos acoplados a detectores CR-39, na linha de BNCT do reator IEA-R1 IPEN/CNEN, em São Paulo. Após a irradiação, os detectores foram atacados quimicamente com NaOH para revelar os traços. A metodologia utilizada apresentou-se eficaz, pois resultou na deposição de boro na forma de filme fino possibilitando a análise quantitativa da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. A análise da uniformidade da densidade de traços induzidos no CR-39 mostra que, na maioria dos filmes, não há uniformidade na distribuição superficial de boro, mas quando dividimos o filme, obtemos alguns setores uniformes.

Palavras-Chave: Boro, Nêutron, Câncer

ABSTRACT

The Boron Neutron Capture Therapy (BNCT), based on the $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ reaction, represents a promising modality for the treatment of cancers that are resistant to conventional treatments. So, it is necessary to find drugs (boron compounds) with high selectivity for each type of cancer, the neutrons source should be well characterized and the rate of $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ reaction should be measured with great accuracy as possible. This study aimed to develop a method for manufacturing thin films of boron, for measure the $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ reaction, and analyze the uniformity of the films. Five thin films of boron were manufactured with three different concentrations of boric acid, heated to transform the acid in boron, irradiated with thermal neutrons coupled to CR-39 detectors, in BNCT line at the reactor IEA-R1 IPEN/CNEN, São Paulo. After the irradiation, the detectors were chemically attacked with NaOH to reveal the tracks. The methodology presented is effective because it resulted in deposition of boron as thin film enabling the quantitative analysis of $^{10}\text{B}(\text{n},\alpha)^7\text{Li}$ reaction. The analysis of the uniformity of density of the induced tracks in CR-39 shows that, in most of the films, there is no uniformity in surface distribution of boron, but when the film is divided, we obtain some uniform sectors.

Keywords: Boron, Neutron, Cancer

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO.....	7
2. OBJETIVOS.....	8
3. BORO.....	8
4. BNCT	9
5. MATERIAIS E MÉTODOS.....	11
5.1. Confeções dos filmes de boro.....	11
5.1.1. Cálculo da concentração de Boro.....	12
5.1.2. Deposição.....	12
5.1.3. Aquecimento.....	13
6. DETECTORES SÓLIDOS DE TRAÇOS NUCLEARES.....	15
7. IRRADIAÇÃO.....	16
7.1. Formação de traços latentes.....	17
8. ATAQUE QUÍMICO.....	18
8.1. Procedimentos para o ataque químico.....	19
9. CONTAGEM DOS TRAÇOS.....	20
10. RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	21
10.1. Análise da uniformidade.....	24
10.1.1. Filme B2-3 (cr-459).....	25
10.1.2. Filme B1-1 (cr-456).....	27
10.1.3. Filme B2-1(cr-465).....	28
10.1.4. Filme C(cr-323).....	30
10.1.5. Filme D(cr-344).....	32
11. CONCLUSÃO.....	34
12. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	35

1. INTRODUÇÃO

Atualmente, o número de pessoas diagnosticadas com câncer tem aumentado. Isso tem mobilizado pesquisadores de todas as regiões do mundo na busca de novos tratamentos para a cura ou, em algumas situações, aumentar a expectativa e a qualidade de vida do paciente.

Após décadas de pesquisas, alguns tipos de câncer (glioblastoma multiforme, câncer cerebral primário, etc.), ainda são extremamente resistentes a todas as formas de tratamento, incluindo cirurgia, quimioterapia, radioterapia, Imunoterapia, entre outras. Mesmo com a combinação agressiva de algumas terapias, a sobrevivência dos pacientes diagnosticados com esses tipos de cânceres tem sido muito baixa. (BARTH et al., 2005).

A Terapia por Captura de Nêutrons pelo Boro (“Boron Neutron Capture Therapy” – BNCT) tem se apresentado como um tratamento viável para cânceres situados em locais de difícil acesso ou que já apresentaram metástase (BARTH et al., 2005). Ela é baseada na reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, esquematizada na Figura 1.

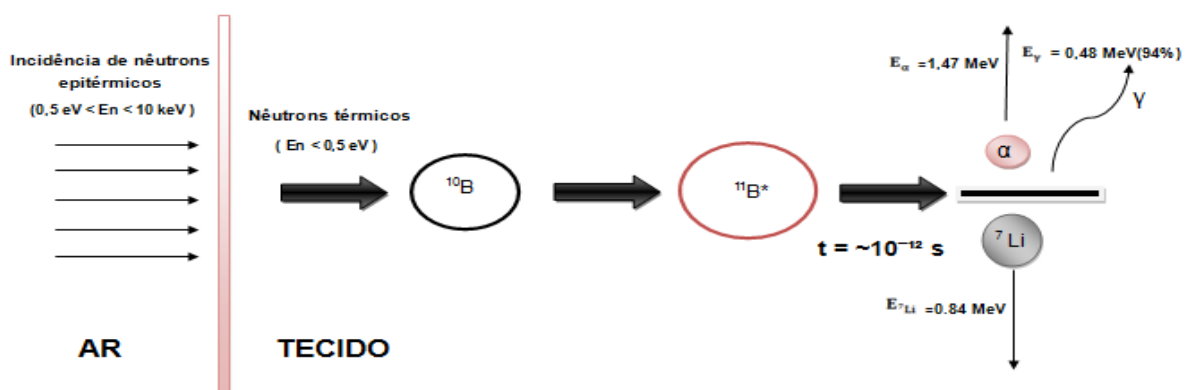


Figura 1. Esquema de interação ^{10}B e nêutrons

A alta taxa de deposição de energia das partículas alfa causa a morte imediata das células, tornando esta técnica eficaz se o tecido sadio for pouco exposto a esta radiação.

Para a eficácia do BNCT nos tumores, como no glioblastoma multiforme, é necessário o acúmulo de uma alta concentração de ^{10}B ($\sim 10^9$ átomos de ^{10}B /célula) nos tumores e uma fluência de nêutrons térmicos adequada ($\sim 10^{12}$ nêutrons/cm²) (DIAZ et al.,2000).Para isso é preciso que se encontrem drogas (compostos borados) com alta seletividade para cada tipo de câncer (BARTH, 2009), que a fonte de nêutrons seja bem caracterizada e que a taxa de reação envolvida, $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$, seja medida com a maior acurácia possível (HARLING et al., 2005).

2. OBJETIVOS

O presente trabalho objetiva desenvolver uma metodologia de confecção de filmes finos de Boro (B), para ser usado como dosímetro de nêutrons, com a finalidade de medir a taxa de reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ na Terapia por Captura de Nêutrons pelo Boro (BNCT).

Complementarmente, objetiva-se a caracterização dos filmes finos de boro através da análise da uniformidade e da quantidade de átomos de boro presentes nos filmes.

3. BORO

O elemento boro foi descoberto, simultaneamente, por Humprey Davy na Inglaterra e por Gay-Lussac e Thernard na França. O método de obtenção baseia-se na redução do ácido bórico pelo potássio. Mossain em 1892, demonstrou que o produto obtido pelo processo de Davy, Gay-Lussac e Thernard não era puro, e através da redução do oxido de boro por magnésico conseguiu obter um boro de alta pureza (AMARAL, 1934).

O boro, cujo símbolo é B, situa-se no grupo 3A da classificação periódica e apresenta número atômico igual a 5 e configuração eletrônica $1s^2 2s^2 2p^1$. Possui alto ponto de fusão ($\sim 2300^\circ\text{C}$) e de dureza (9,3), bem próximo do diamante(10).

Na natureza o boro é encontrado nas seguintes concentrações isotópicas ^{10}B (19,6%) e ^{11}B (80,4%), e é um dos poucos elementos com esta distribuição isotópica. Por isso, seu peso atômico varia de forma mensurável em amostras provenientes de diferentes localizações geográficas. Por esta razão, o peso atômico é dado utilizando duas casa decimais (10,81).

A alta seção de choque do isótopo ^{10}B (3835 bars) é uma propriedade que tem sido explorada em reatores nucleares e, ultimamente, de grande interesse no campo da terapia do câncer. (COTTON e WILKINSON,1999)

Nos reatores, são instaladas barras de controle contendo boro para moderar o fluxo de neutrôns. A grande absorção de neutrôns térmicos pelo ^{10}B que resulta em um decaimento α , com produtos ^7Li e partícula α , não radioativos, está sendo usada em alguns países (Japão, Estados Unidos, Argentina, etc..) como terapia de câncer.

4. BNCT

A Terapia por Captura de Nêutrons pelo Boro (“Boron Neutron Capture Therapy” – BNCT), em teoria prevê um modo de destruir seletivamente as células cancerígenas através da energia liberada ($\sim 2,35\text{MeV}$) pela reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ e poupar as células normais.

A BNCT foi proposta em 1936 pelo biofísico Gordon L. Locker, mas somente em 1951 nos Estados Unidos a terapia foi iniciada. Partir disso começou um grande estudo em buscas de fármacos contendo ^{10}B e de modificações e construção de reatores nucleares para aplicações médicas.

Os nêutrons, obtidos principalmente em reatores, são classificados de acordo com as suas energias: térmicos ($E_n < 0,5 \text{ eV}$), epitérmicos ($0,5 \text{ eV} < E_n < 10 \text{ KeV}$), ou rápidos ($E_n > 10 \text{ KeV}$). Os nêutrons térmicos são os mais importantes para o BNCT, porque gera a reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. No entanto, são utilizados nêutrons epitérmicos

porque sua profundidade de penetração é limitada. Assim, ao penetrarem no tecido, perdem energia e caem para a faixa térmica (BARTH et al., 2005). Assim, atualmente, vários reatores estão sendo adaptados para serem usados clinicamente, como por exemplo, o reator do Instituto de Tecnologia de Massachusewts (MITR), demonstrado na Figura 2, que apresenta alto desempenho de irradiação de nêutrons epitérmicos e térmicos, e instalações adequadas para estudo pré-clínicos e clínicos (HARLING et al., 2005).

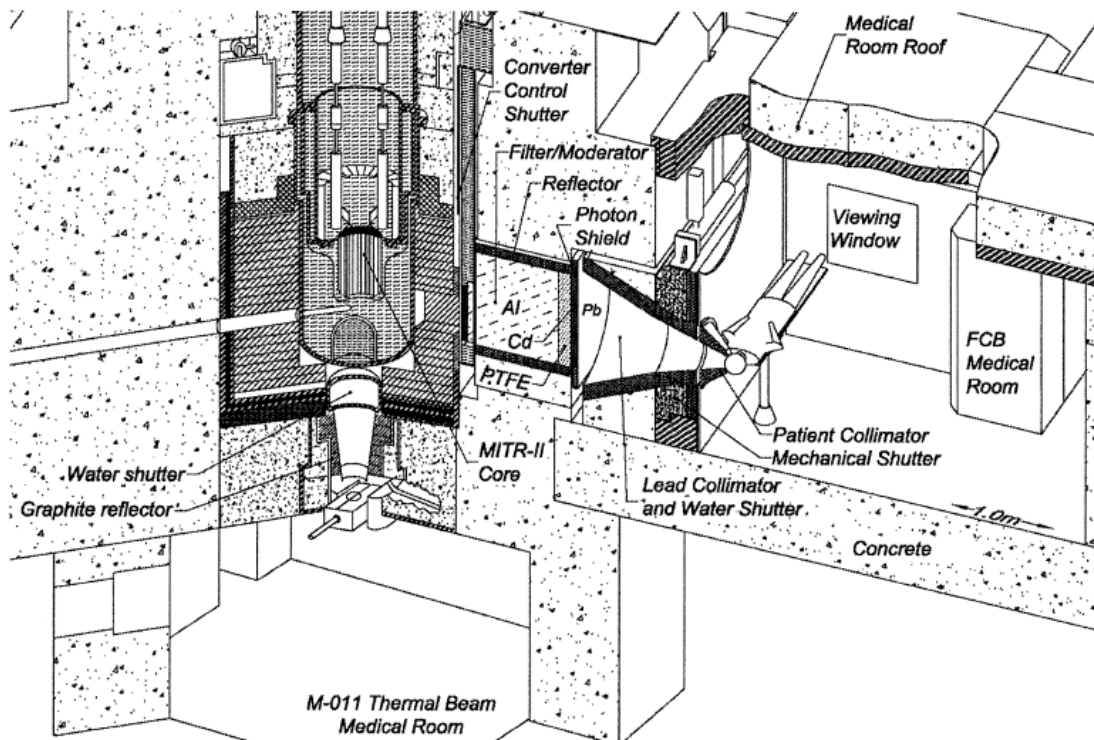


Figura 2. Reator do Instituto de Tecnologia de Massachusewts (MITR), desenvolvido para ser utilizado clinicamente.

5. MATERIAIS E MÉTODOS

5.1 Confeccões dos filmes de boro

Os filmes de boro foram confeccionados utilizando o método da ignição de parlodium, mesmo procedimento usado na confecção de filmes de urânio e tório (BIGAZZI et al., 1995, YAGODA, 1984).

Essa técnica é baseada na deposição sobre uma superfície selecionada de mica moscovita, uma solução de ácido bórico (H_3BO_3) dissolvido em água deionizada misturada com um coloide, dissolvido em éter e álcool.

Com o objetivo de encontrar a melhor metodologia para confecção, cinco filmes finos (B1-1,B2-1,B2-3,C,D) foram confeccionados em diferentes concentrações de Boro, estes foram aquecidos em duas temperaturas diferentes e irradiados com nêutrons térmicos em dois tempos diferentes na linha de BNCT do reator IEA-R1 IPEN/CNEN, em São Paulo, em um fluxo nominal de aproximadamente $10^8 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. As condições de confecção e irradiação para cada filme estão mostradas na Tabela 1.

Tabela 1. Filmes finos de Boro com diferentes concentrações e seus respectivos coloides, aquecimentos e tempos de irradiações.

Filmes	Solução	Colóide	Aquecimento (°C)/4 Horas	Numeração de detectores	Tempo de irradiação	Concentração (atm/cm ²)
B1-1	0,03±0,01 g H ₃ BO ₃ / 1litro H ₂ O	parlodium	400	(CR-39)456	1 hora	~ 10 ¹³
B2-1	0,29±0,01 g H ₃ BO ₃ / 1litro H ₂ O	parlodium	400	(CR-39)465	10 min	~ 10 ¹⁴
B2-3	0,29±0,01 g H ₃ BO ₃ / 1litro H ₂ O	parlodium	750	(CR-39)459	10 min	~ 10 ¹⁴
C	0,003 g H ₃ BO ₃ / 1litro H ₂ O	Álcool em gel	400	(CR-39)323	1hora	~ 10 ¹²
D	0,003 g H ₃ BO ₃ / 1litro H ₂ O	parlodium	400	(CR-39)344	1hora	~ 10 ¹²

5.1.1 Cálculo da concentração de Boro

O cálculo para se estimar a quantidade de ácido bórico é necessário para poder obter filmes com densidades de traços ideais para a análise do filme. Esse cálculo depende da fluência de nêutrons na qual o filme será utilizado como dosímetro, como mostra a equação 1.

$$\rho = \frac{1}{2} \varepsilon \cdot \sigma \cdot \Phi \cdot \Delta t N_B \quad (1)$$

ρ : densidade superficial de traços deixados pelas partículas produto (traços/cm²)

N_B : núcleos de boro por cm²

ε_B : eficiência de detecção (0,7)

$\Phi \cdot \Delta t$: fluência de nêutrons integrada no tempo ($\sim 10^8$ nêutrons/cm².s)

σ : seção de choque do ¹⁰B (3835 bars)

Conhecendo-se a quantidade de boro por cm² (N_B) e relacionando com a área total do filme, e posteriormente com porcentagem de ¹⁰B na natureza, podemos ,após alguns cálculos, estimar a concentração exata de ácido bórico utilizada para a confecção dos filmes.

5.1.2 Deposição

Para a confecção dos filmes foram utilizados dois tipos de colóide, parlodium seguindo a metodologia proposta por Yagoda (BIGAZZI et al., 1995, YAGODA, 1984) e álcool em gel.

Baseado em Yagoda (1984), a função do coloide é homogeneizar o filme. Isso ocorre ao se utilizar quantidades aproximadamente iguais de ácido bórico e do coloide.

A mica moscovita, mostrada na Figura 3 foi fixada em uma mesa devidamente nivelada com fitas isolantes, formando uma piscina, com o objetivo de definir a área total do filme.

A mica moscovita, mineral da classe dos silicatos de composição química $KAl_2(AlSi_3O_{10})(OH)_2$, foi escolhida para ser base na confecção dos filmes pois sua superfície é lisa.



Figura 3. mica moscovita

A solução de ácido bórico/colóide foi dissolvida em éter e álcool e depositada na piscina com uma pipeta micrométrica de modo que se espalhasse por toda a área definida. Após um determinado tempo para a evaporação do álcool e do éter, obtivemos um filme contendo ácido bórico e o colóide.

5.1.3 Aquecimento

Após a evaporação dos solventes, a fita isolante é retirada e o filme/mica moscovita é levado ao forno (Figura 4) para o aquecimento a uma temperatura de 400°C/750°C. A essa temperatura em poucos minutos, o colóide entra em combustão.



Figura 4. Forno utilizado para aquecimento de amostras

Neste processo o ácido bórico de formula molecular H_3BO_3 e formula estrutural mostrada na Figura 5 com ponto de fusão da ordem de 170°C e densidade na temperatura ambiente igual a $1,48\text{g/cm}^3$ passa por um processo de desidratação, dado pela reação 1.

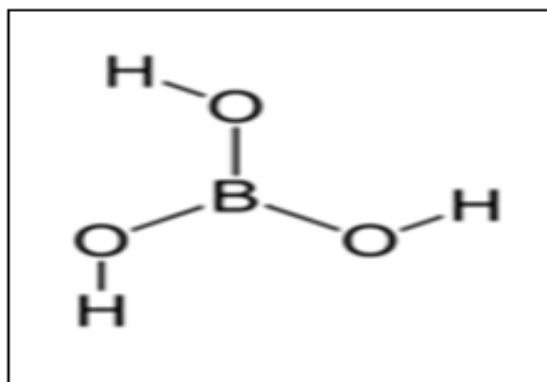
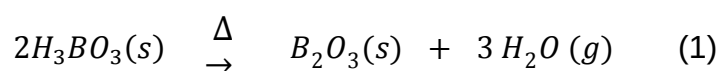


Figura 5. Formula estrutural ácido bórico.



Segundo Dasgupta e Banerjee (1955), que estudaram as transformações de fase dos compostos decorrentes da desidratação do ácido bórico, até a temperatura de 100°C o ácido bórico não tem perda de massa. A partir da análise de difração de raios-x pode-se verificar que acima de 100°C ocorria transformação H_3BO_3 em ácido metabórico (HBO_2), e que posteriormente a mesma análise verificou-se que acima de 140° C apenas ocorria a formação de óxido de boro (B_2O_3).

O aquecimento tem duração 4 horas, com objetivo aderir o filme de óxido de boro à mica moscovita e para que desapareçam todos os resíduos do coloide.

6. DETECTORES SÓLIDOS DE TRAÇOS NUCLEARES

Para fazer a detecção de partículas alfa e do lítio de recuo na reação $^{10}B(n,\alpha)^7Li$, o filme fino de boro é acoplado a um detector sólido de traços nucleares e enviado para o reator para irradiação com nêutrons térmicos.

O detector utilizado foi CR-39 (Figura 6) que apresenta um contraste ideal para a visualização de traços, e é constituído por um material resistente usado inicialmente como material para lentes (CARTWRIGHT *et al*, 1978).

O CR- 39 é transparente, com dimensões variadas, constituído por polímeros conhecidos como di-álil-carbonato de dietileno glicol ($C_{12}H_{18}O_7$), com composições estimada de 48,6% de H, 32,4 % de C e 18, 9% de O (MOURA, 2005, SILVA, 2000).

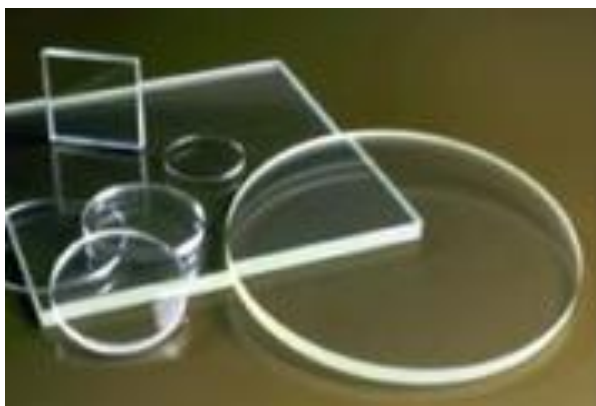


Figura 6. SSTD (Solid State Nuclear Track Detector) CR-39

Este detector é sensível às partículas alfa com energia da ordem de keV até dezenas de MeV (MOURA, 2005, ABU-JARAD, 1981) permitindo medidas de comprimento de traços e ângulo de incidência, podendo inclusive viabilizar a medida de energia das partículas (HADLER, 1995, PAULO, 1991).

7. IRRADIAÇÃO

A montagem filme/detector foi irradiada com nêutrons térmicos na linha de BNCT do reator IEA-R1 IPEN/CNEN, em São Paulo, em um fluxo nominal de aproximadamente $10^8 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$. O processo de irradiação e formação dos traços latentes no detector é mostrado na Figura 7.

Após a captura de nêutrons térmicos, os núcleos de ^{10}B passam a um estado excitado do ^{11}B , posteriormente ocorrendo um decaimento alfa. Como resultado da reação partículas alfa e átomos de lítio, que são produtos não radioativos, que acabam se chocando com o detector e formando os traços latentes.

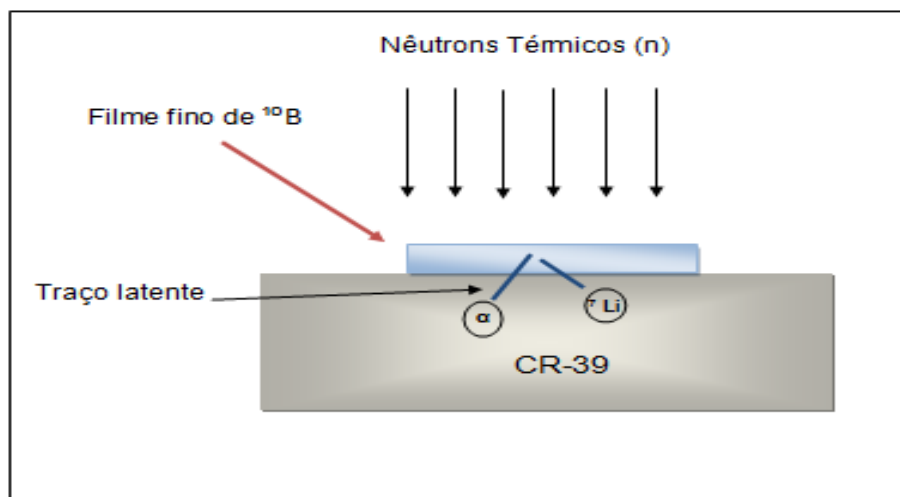


Figura 7. Processo de irradiação do filme fino de boro e formação dos traços latentes no detector CR-39.

O tempo de irradiação dos detectores está relacionado com a concentração de cada filme fino, pois o excesso de traços produzidos pela reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ dificulta a contagem e a análise de uniformidade.

7.1. Formação de traços latentes

Segundo o modelo proposto por Fleischer e colaboradores (FLEISHER, PRINCE e WALKER, 1975) denominado modelo da explosão iônica ("The Ion – Explosion spike model"), uma partícula carregada positivamente em alta velocidade ioniza os átomos da região pelo qual ela passa (ionização primária), originando ao longo de seu percurso uma repulsão mútua entre os íons positivos, criando vacâncias e íons intersticiais, e dessa forma provocando deformações na estrutura do material. Esta deformação é devida basicamente à ionização primária de um processo de explosão de íons.

Para Enge (SOOMGYI, 1980), a radiação ionizante altera profundamente a estrutura dos materiais poliméricos, nos quais, uma vez irradiados, pode ocorrer a cisão da cadeia polimérica principal, levando a uma diminuição da massa molecular. As cadeias podem ser destruídas tanto pelo processo primário de ionização, como pelos elétrons de recuo (raios deltas), após o choque com a partícula incidente. A sensibilidade dos detectores plásticos está associada à desestruturação secundária das cadeias do polímero, ocasionada pela energia da partícula alfa.

O processo de formação de um traço latente em um polímero é mostrado esquematicamente na Figura 8. (ARAÚJO, 2003, ZYLBERBERG, H, 1989).

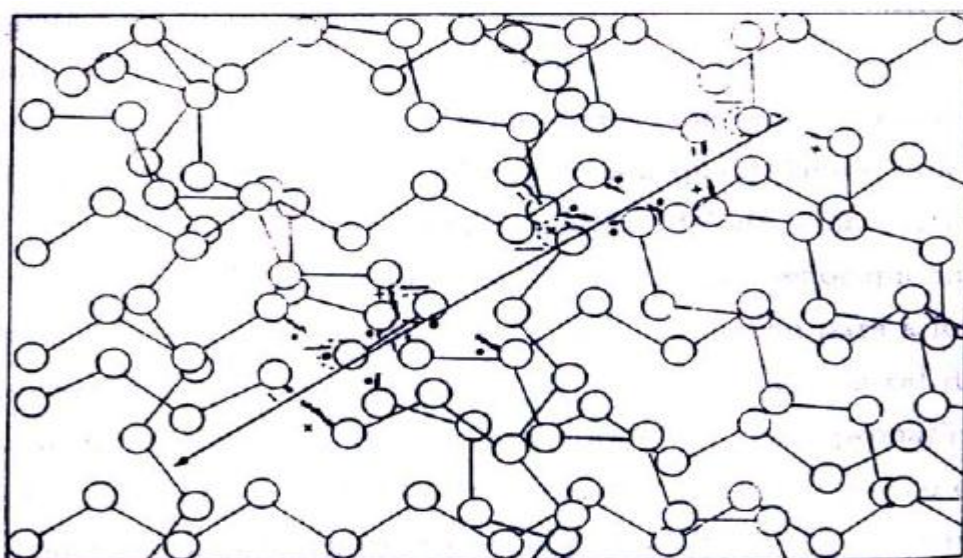


Figura 8. Formação de um traço latente de uma partícula carregada em um polímero orgânico de ligações cruzadas de quebra das longas cadeias de moléculas produzindo outras menores com radicais livres e altamente reativas.

As regiões em que se formaram os traços latentes se caracterizam pela facilidade com que são atacadas quimicamente por um reagente em comparação com as regiões não danificadas.

8. ATAQUE QUÍMICO

O ataque químico é utilizado para revelar os traços latentes, ou seja, faz com que os traços fiquem visíveis a um microscópio óptico, podendo-se assim medir seus parâmetros (dimensão, profundidade, formato e opacidade) e quantidade em toda a região do detector.

O hidróxido de Sódio (NaOH), em detectores plásticos, e o ácido fluorídrico (HF), em vidros e micas, atuam nos detectores corroendo homogeneamente sua superfície a uma velocidade que é dependente da temperatura e da concentração da substância.

A região danificada pela passagem de íons, partículas alfa ou fragmentos de fissão é mais reativa ao ataque químico do que a superfície do detector, devido a uma menor resistência na região que ocorreu o dano molecular, tendo maior reação nesta região, levando ao alargamento do traço como mostra a Figura 9.

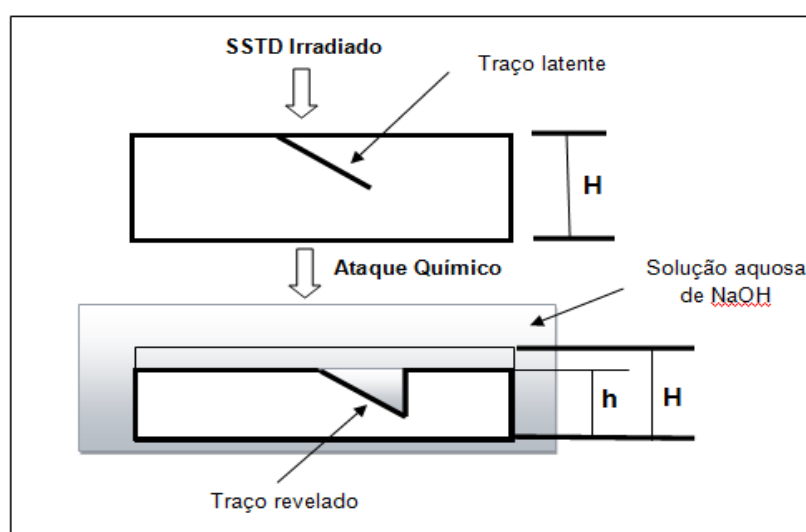


Figura 9. Influência do ataque químico na revelação do traço, tendo uma maior reação na região danificada do que na superfície do detector que sofre uma variação de altura (H para h).

O traço latente tem cerca de 30 a 100 Å de diâmetro, e é visível apenas ao microscópio eletrônico (em aumento da ordem de $10^5\times$). Com o ataque químico, os traços podem atingir diâmetros da ordem de 10^4 ou 10^5Å . Como este valor é comparável ao comprimento de onda da luz visível, os traços ampliados poderão ser vistos ao microscópio ótico (em aumento da ordem de $10^3\times$) (ARAÚJO, 2003).

Para a revelação dos traços em detectores plásticos (CR-39), o agente mais utilizado é uma solução aquosa de NaOH, numa concentração que varia de 1 a 12M, numa temperatura entre 40° e 70° C (DURANI e BULL, 1987).

8.1 Procedimentos para o ataque químico

No ataque químico, realizado no Laboratório de química do Grupo de Cronologia do Instituto de Física-UNICAMP (SP), o detector CR-39 de dimensões 3x3 cm é colocado dentro de um béquer de plástico junto a 50 g NaOH diluído em 100 ml de água deionizada e colocado em um banho térmico (Figura 10) a uma temperatura estabilizada de 70°C, durante um período de 1 hora e 40 minutos.



Figura 10. Banho térmico

Após atingir o tempo necessário o béquer é retirado do banho e colocado em baixo de água corrente para lavar o detector e terminar com o processo de ataque químico.

9. CONTAGEM DOS TRAÇOS

O microscópio (Figura 11) utilizado para se efetuar contagem de traços (Zeiss, Axioplan 2 Imaging), do Laboratório de microscopia do Grupo de Cronologia do Instituto de Física-UNICAMP (SP), com aumento nominal de 1000 vezes, possui um sistema de eixos (x e y) que possibilita a orientação espacial ao longo de toda superfície do filme/detector.



Figura 11. Microscópio Zeiss, modelo Axioplan 2 Imaging

O sistema de eixos possibilita a movimentação e a análise de qualquer região do filme/detector.

A contagem é feita em campos com área de 10^{-4} cm^2 , variando 0,1cm de um campo para outro na horizontal e na vertical, formando uma matriz mostrada na Figura 12, dando o posicionamento de cada campo por linhas (i) e colunas (j).

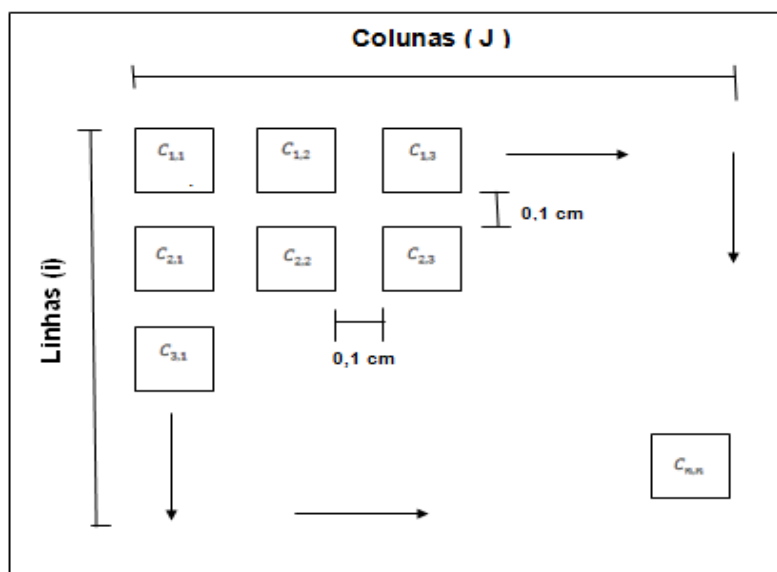


Figura 12. Esquema de campos analisados na contagem de traços, posicionados em linhas e colunas, i e j respectivamente, onde: $1 \leq i, j \leq n$.

10. RESULTADOS E DISCUSSÕES

Como resultado da irradiação e do ataque químico, foram observados traços na frente e no fundo dos detectores, mostrados nas Figuras 13-17. Os traços observados no fundo do detector são resultado da interação dos nêutrons rápidos com os núcleos de hidrogênio, carbono e oxigênio, que compõe o CR-39. Foi feita a contagem e média de cada campo e depois retirada do valor dos traços contados na frente do detector.

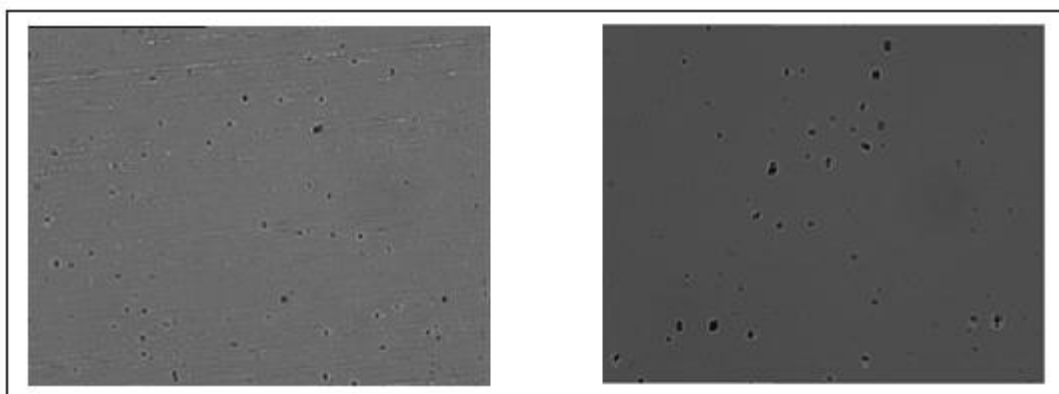


Figura 13. Traços observados na frente e no fundo do detector CR-459 com aumento de 500

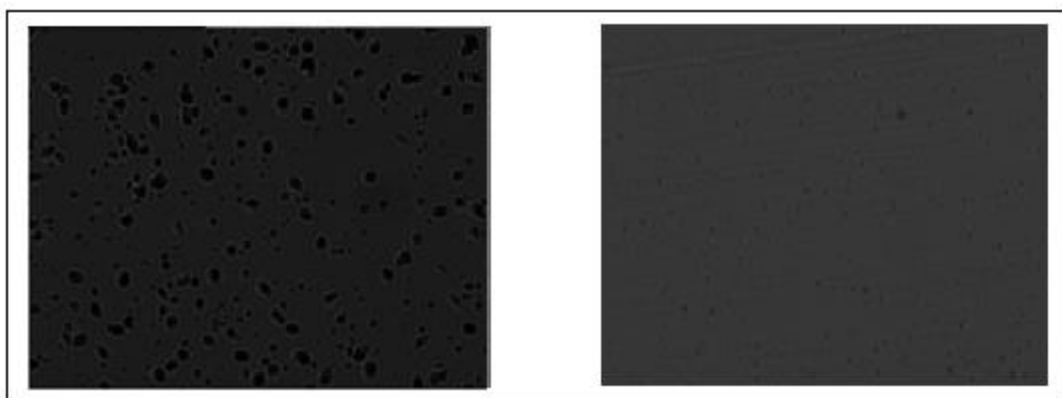


Figura 14. Traços observados na frente e no fundo do detector CR-456 com aumento de 500

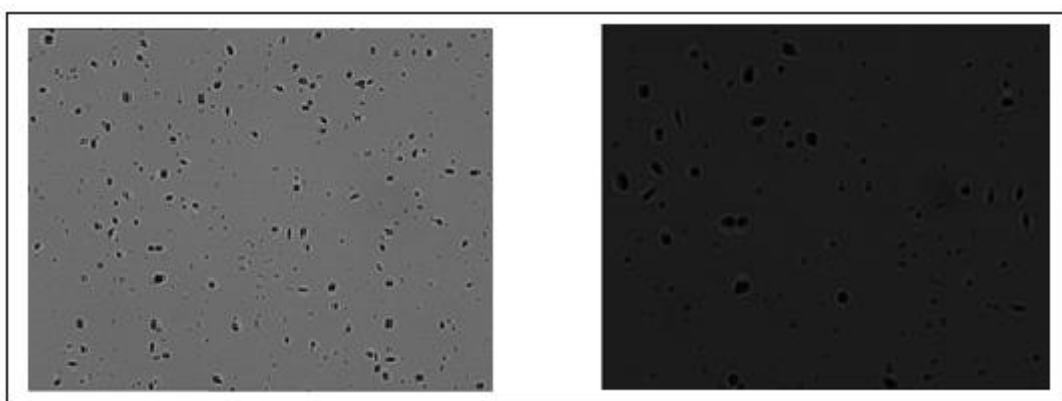


Figura 15. Traços observados na frente e no fundo do detector CR-465 com aumento de 500

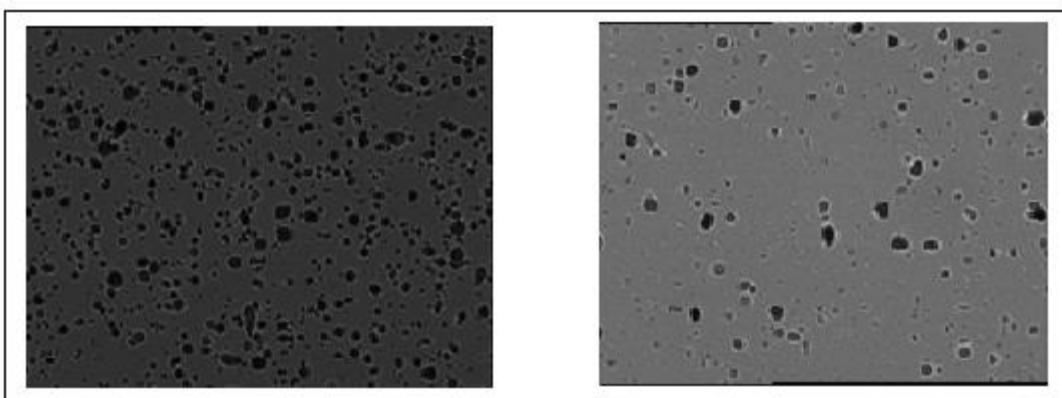


Figura 16. Traços observados na frente e no fundo do detector CR-323 com aumento de 500

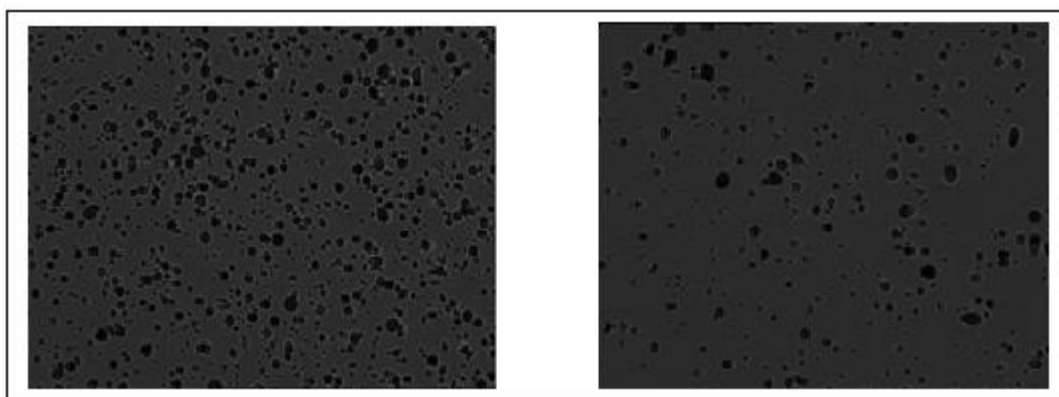


Figura 17. Traços observados na frente e no fundo do detector CR-344 com aumento de 500

As imagens foram tiradas com a câmera Pulmix acoplada ao microscópio Zeiss, utilizando o programa Easy Grab Pícolo.Multicam 3.3.

Pode-se notar, analisando as imagens de cada detector, que a quantidade de traços na frente do detector (região com o filme) é superior à quantidade de traços no fundo do detector (região sem o filme), o que é confirmado após a contagem dos traços em cada detector, com isso, pode-se concluir que houve deposição de boro nos filmes acoplados nos detectores.

10.1. Análise da uniformidade

Após a contagem dos traços, conseguimos analisar a uniformidade dos filmes através do cálculo do valor P (equação 3) da distribuição de χ^2 (equação 2) e ndf(números de graus de liberdade) (equação 1) que expressa a significância estatística dos dados (SHESKIN, 2000).

$$ndf = N - 1 \quad (\text{equação 1})$$

N = Total de campos analisados

$$\chi^2 = \sum_{1 \leq i, j} (M_{pc} - C_{i,j})^2 / C_{i,j} \quad (\text{equação 2})$$

$C_{i,j}$ = Campo analisado, onde i e j representam, respectivamente, a linha e coluna do campo.

M_{pc} = Média ponderada de todos os campos analisados

$$P_{\chi^2, d} = \left[2^{\frac{ndf}{2}} \Gamma\left(\frac{d}{2}\right) \right]^{-1} \int_{\chi^2}^{\infty} (t)^{\frac{ndf}{2}-1} e^{-t/2} dt \quad (\text{equação 3})$$

Onde Γ é generalização da função fatorial para argumentos reais e complexos:

$$\Gamma_x = \int_0^{\infty} t^{x-1} e^{-t} dt$$

Neste trabalho, os filmes são considerados uniformes se o valor de P for maior que 0,05. Para todos os filmes confeccionados, de acordo com a Tabela 1, obtive-se valores de $P < 0,05$, assim foi feita uma análise de setores em três filmes (B2-3, B1-1 e B1-3). Os filmes foram divididos em quatro setores e analisados novamente, e tivemos como resultado somente dois setores do filme B1-1 com valores de $P > 0,05$, como mostra a Tabela 2.

Tabela 2. Valores de P para os filmes B2-3, B1-1 e B1-3.

Filmes	área total	setor 1	setor 2	setor 3	setor 4
B2.3	1,19E-33	1,20E-10	4,00E-05	2,00E-10	7,00E-08
B1.1	4,80E-06	0,02	4,00E-05	0,26	0,11
B2.1	1,65E-153	1,50E-28	1,70E-29	1,20E-66	3,40E-14

10.1.1. Filme B2-3 (cr-459)

Foram contados um total de 100 campos (Tabela 3) na frente do detector e 25 no fundo do detector (Tabela 4). Após a contagem foi obtida uma média 45 traços no fundo do detector e depois retirada do valor dos traços contados na frente do detector (Tabela 5).

Tabela 3. Quantidade de traços contados em cada campo na frente do detector CR-459.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5	j-6	j-7	j-8	j-9	j-10
i-1	94	131	118	117	127	129	139	138	120	121
i-2	138	113	119	146	141	130	107	132	135	139
i-3	102	145	137	142	128	126	108	152	133	157
i-4	155	135	152	139	156	132	148	156	142	172
i-5	162	149	153	135	147	116	142	135	143	132
i-6	150	130	131	140	136	129	133	150	122	133
i-7	156	132	159	142	167	144	163	166	125	162
i-8	135	138	150	154	159	154	158	133	133	190
i-9	94	142	148	170	132	159	128	148	156	121
i-10	165	149	163	167	173	144	149	165	169	184

Tabela 4. Quantidade de traços contados em cada campo no fundo do detector CR-459.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	45	45	49	43	39
i-2	43	55	38	39	48
i-3	43	42	47	47	43
i-4	44	47	50	47	44
i-5	51	41	44	51	37

Tabela 5. Divisão de setores no filme B2-3 para análise de uniformidade, após subtração de traços do fundo do detector.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5	j-6	j-7	j-8	j-9	j-10
i-1	49	86	73	72	82	84	94	93	75	76
i-2	93	68	74	101	96	85	62	87	90	94
i-3	57	100	92	97	83	81	63	107	88	112
i-4	110	90	107	94	111	87	103	111	97	127
i-5	117	104	108	90	102	71	97	90	98	87
i-6	105	85	86	95	91	84	88	105	77	88
i-7	111	87	114	97	122	99	118	121	80	117
i-8	90	93	105	109	114	109	113	88	88	145
i-9	49	97	103	125	87	114	83	103	111	76
i-10	120	104	118	122	128	99	104	120	124	139

Analisando a tabela 5, obtemos uma densidade de traços de aproximadamente $9,66 \times 10^5$ traços. cm^{-2} , a distribuição de traços ao longo do filme é mostrada na Figura 18, com seus respectivos valores de M_{pc} , ndf, χ^2 e valor de P.

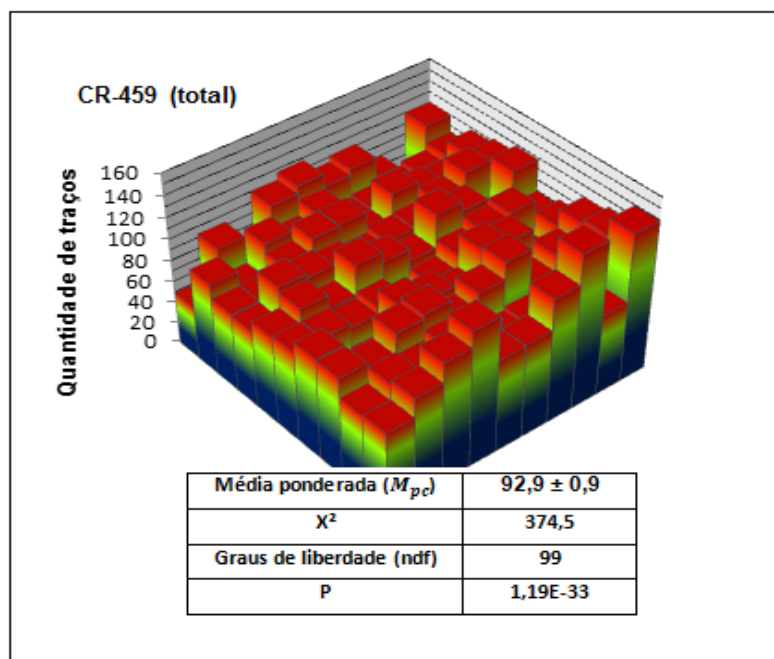


Figura 18. Uniformidade de traços em cada região dos filmes B2-3 e seus respectivos resultados de M_{pc} , χ^2 , NDF e P.

10.1.2. Filme B1-1 (cr-456)

Foram contados um total de 100 campos (Tabela 6) na frente do detector e 25 no fundo do detector (Tabela 7). Após a contagem foi obtida uma média 238 traços no fundo do detector e depois retirada do valor dos traços contados na frente do detector (Tabela 8).

Tabela 6. Quantidade de traços contados em cada campo na frente do detector CR-456.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5	j-6	j-7	j-8	j-9	j-10
i-1	455	471	446	457	454	434	452	470	492	483
i-2	448	454	437	436	461	474	416	420	469	474
i-3	422	433	444	422	429	434	449	464	450	465
i-4	428	420	471	431	415	426	450	415	457	475
i-5	469	432	483	434	421	444	455	424	475	471
i-6	475	426	435	446	445	438	431	431	431	416
i-7	433	424	455	428	419	441	483	425	422	424
i-8	451	416	429	422	459	451	437	462	420	438
i-9	424	454	450	464	448	428	433	425	459	445
i-10	435	434	443	426	454	445	418	423	422	470

Tabela 7. Quantidade de traços contados em cada campo no fundo do detector CR-456.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	255	220	237	228	244
i-2	231	227	240	239	236
i-3	250	234	236	238	241
i-4	241	248	252	245	235
i-5	223	231	238	240	238

Tabela 8. Divisão de setores no filme B1-1 para análise de uniformidade, após subtração de traços do fundo do detector.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5	j-6	j-7	j-8	j-9	j-10
i-1	217	233	208	219	216	196	214	232	254	245
i-2	210	216	199	198	223	236	178	182	231	236
i-3	184	195	206	184	191	196	211	226	212	227
i-4	190	182	233	193	177	188	212	177	219	237
i-5	231	194	245	196	183	206	217	186	237	233
i-6	237	188	197	208	207	200	193	193	193	178
i-7	195	186	217	190	181	203	245	187	184	186
i-8	213	178	191	184	221	213	199	224	182	200
i-9	186	216	212	226	210	190	195	187	221	207
i-10	197	196	205	188	216	207	180	185	184	232

Analisando a Tabela 8, obtemos uma densidade de traços de aproximadamente $2,05 \times 10^6$ traços.cm⁻², a distribuição de traços ao longo do filme é mostrada na Figura 19, com seus respectivos valores de M_{pc} , ndf, e χ^2 valor de P.

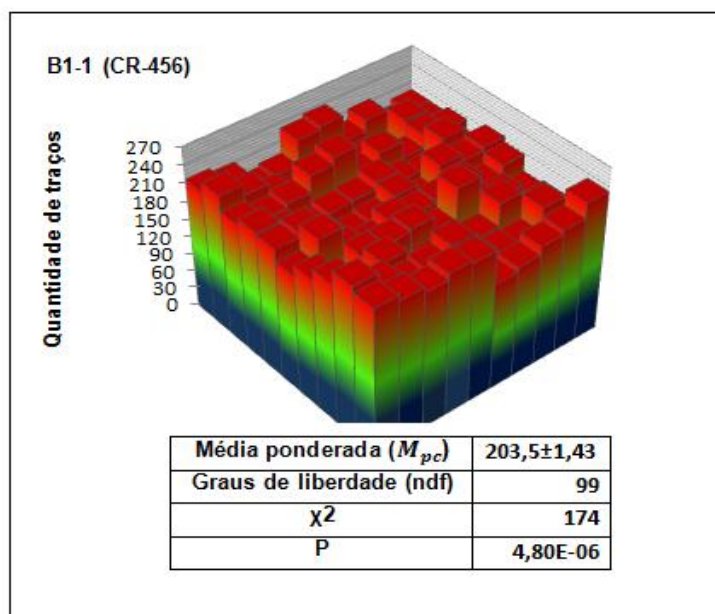


Figura 19. Uniformidade de traços em cada região dos filmes B1-1 e seus respectivos resultados de M_{pc} , χ^2 , NDF e P.

10.1.3. Filme B2-1(cr-465)

Foram contados um total de 100 campos (Tabela 9) na frente do detector e 25 no fundo do detector (Tabela 10). Após a contagem foi obtida uma média 61 traços no fundo do detector e depois retirada do valor dos traços contados na frente do detector (Tabela 11).

Tabela 9. Quantidade de traços contados em cada campo na frente do detector CR-465.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5	j-6	j-7	j-8	j-9	j-10
i-1	138	132	142	142	142	136	119	140	98	95
i-2	85	104	121	138	127	146	131	108	84	94
i-3	91	139	112	137	137	143	123	117	97	85
i-4	156	115	139	136	131	110	115	108	112	83
i-5	116	151	155	143	163	122	107	160	123	117
i-6	144	165	158	152	161	157	118	142	117	126
i-7	160	171	170	174	177	149	161	177	118	116
i-8	144	107	100	84	131	174	133	140	162	159
i-9	122	122	84	132	86	127	123	122	129	119
i-10	108	123	119	98	107	114	131	109	113	119

Tabela 10. Quantidade de traços contados em cada campo no fundo do detector CR-465.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	70	67	72	71	54
i-2	71	50	62	52	56
i-3	56	60	53	59	76
i-4	55	48	48	67	50
i-5	68	55	69	65	61

Tabela 11. Divisão de setores no filme B2-1 para análise de uniformidade, após subtração de traços do fundo do detector.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5	j-6	j-7	j-8	j-9	j-10
i-1	77	71	81	81	81	75	58	79	37	34
i-2	24	43	60	77	66	85	70	47	23	33
i-3	30	78	51	76	76	82	62	56	36	24
i-4	95	54	78	75	70	49	54	47	51	22
i-5	55	90	94	82	102	61	46	99	62	56
i-6	83	104	97	91	100	96	57	81	56	65
i-7	99	110	109	113	116	88	100	116	57	55
i-8	83	46	39	23	70	113	72	79	101	98
i-9	61	61	23	71	25	66	62	61	68	58
i-10	47	62	58	37	46	53	70	48	52	58

Analisando a Tabela 11, obtemos uma densidade de traços de aproximadamente $6,7 \times 10^5$ traços.cm⁻², a distribuição de traços ao longo do filme é mostrada na Figura 20, com seus respectivos valores de M_{pc} , ndf, χ^2 e valor de P.

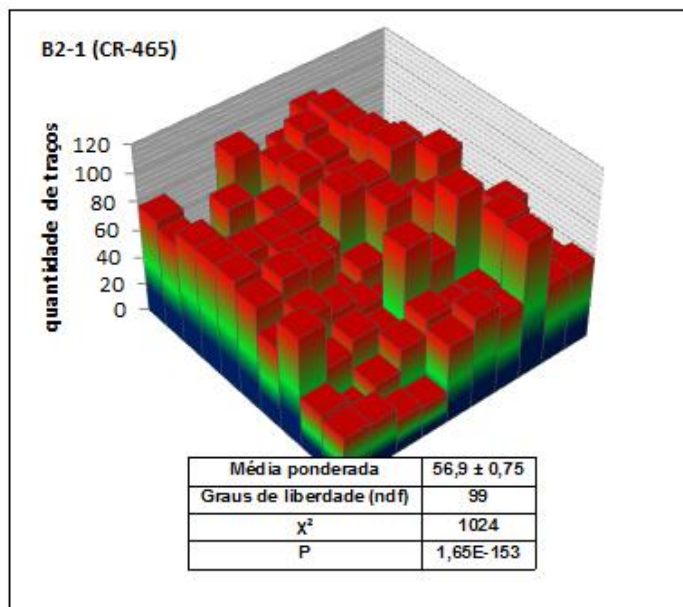


Figura 20. Uniformidade de traços em cada região do filme B2-1 e seus respectivos resultados de M_{pc} , χ^2 , NDF e P.

10.1.4. Filme C(cr-323)

Foram contados um total de 25 campos (Tabela 12) na frente do detector e 25 no fundo do detector (Tabela 13). Após a contagem foi obtida uma média 161 traços no fundo do detector e depois retirada do valor dos traços contados na frente do detector (Tabela 14).

Tabela 12. Quantidade de traços contados em cada campo na frente do detector CR-323.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	444	449	432	416	425
i-2	460	385	439	457	432
i-3	462	454	406	397	429
i-4	405	417	421	403	392
i-5	396	424	386	401	378

Tabela 13. Quantidade de traços contados em cada campo no fundo do detector CR-323.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	178	182	173	176	163
i-2	154	175	157	178	175
i-3	135	178	145	171	148
i-4	139	139	153	158	158
i-5	186	167	165	138	150

Tabela 14. Quantidade de traços na frente do detector Cr-323, após subtração da média de tracos do fundo do detector.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	283	288	271	255	264
i-2	299	224	278	296	271
i-3	301	293	245	236	268
i-4	244	256	260	242	231
i-5	235	263	225	240	217

Analisando a Tabela 14, obtemos uma densidade de traços de aproximadamente $2,59 \times 10^6 \text{ traços.cm}^{-2}$, a distribuição de traços ao longo do filme é mostrada na Figura 21, com seus respectivos valores de M_{pc} , ndf, χ^2 e valor de P.

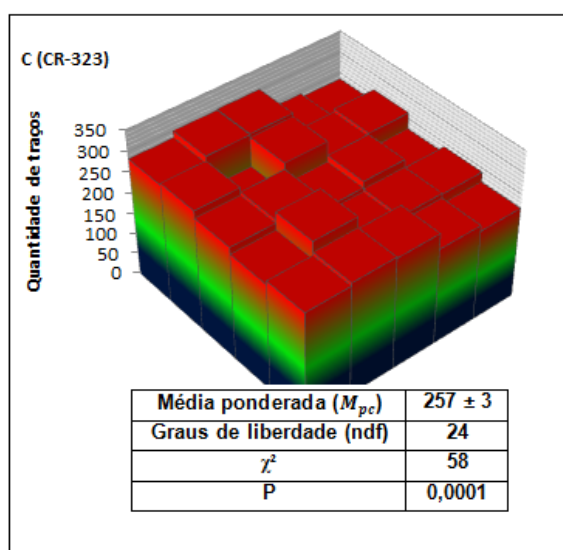


Figura 21. Uniformidade de traços em cada região do filme C e seus respectivos resultados de M_{pc} , χ^2 , NDF e P.

O valor de P obtido foi inferior a 0,05, só que não se pode concluir que o filme não tem uniformidade, pois a quantidade de campos analisados em relação a área total do filme foram muito poucos.

10.1.5. Filme D(cr-344)

Foram contados um total de 25 campos (Tabela 15) na frente do detector e 25 no fundo do detector (Tabela 16). Após a contagem foi obtida uma média de 222 traços no fundo do detector e depois retirados do valor dos traços contados na frente do detector (Tabela 17).

Tabela 15. Quantidade de traços contados em cada campo na frente do detector CR-344

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	431	401	408	390	388
i-2	441	395	414	427	454
i-3	416	411	400	387	410
i-4	431	419	392	422	414
i-5	390	451	408	385	412

Tabela 16. Quantidade de traços contados em cada campo no fundo do detector CR-344.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	235	254	220	244	250
i-2	230	233	225	238	248
i-3	220	244	202	190	208
i-4	202	212	208	203	213
i-5	220	207	214	205	231

Tabela 17. Quantidade de traços na frente do detector Cr-344, após subtração da média de traços do fundo do detector.

	j-1	j-2	j-3	j-4	j-5
i-1	209	179	186	168	166
i-2	219	173	192	205	232
i-3	194	189	178	165	188
i-4	209	197	170	200	192
i-5	168	229	186	163	190

Analisando a Tabela 17, obtemos uma densidade de traços de aproximadamente $1,98 \times 10^6$ traços.cm⁻², a distribuição de traços ao longo do filme é mostrada na Figura 22, com seus respectivos valores de M_{pc} , ndf, χ^2 e valor de P.

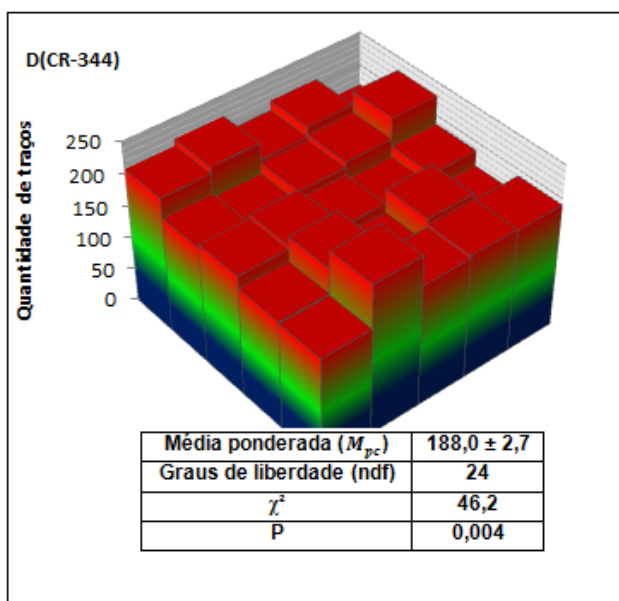


Figura 22. Uniformidade de traços em cada região do filme D e seus respectivos resultados de M_{pc} , χ^2 , NDF e P.

O valor de P obtido foi inferior a 0,05, só que não se pode concluir que o filme não tem uniformidade, pois a quantidade de campos analisados em relação a área total do filme foram muito poucos.

11. CONCLUSÃO

Após a análise dos filmes finos, observa-se que a metodologia para a confecção dos filmes atendeu o objetivo proposto, pois resultou na deposição do boro em forma filme fino em concentrações suficientes para contagem de traços após a irradiação com nêutrons térmicos, possibilitando a análise quantitativa da reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$.

Em relação às variações nas condições de confecção, tempo de aquecimento e tipo de colóide, não se pode observar nenhuma interferência nos resultados, pois para as mesmas condições de confecção dos filmes, obteve-se densidades de traços da mesma ordem nos detectores acoplados aos filmes.

A confecção dos filmes C e D, de concentração ($\sim 10^{12}$ átomos/cm²), apresentou-se eficaz na deposição de boro nos filmes, onde obtemos uma densidade de traços próximo do ideal para poder analisar a reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$. Futuramente, um estudo minucioso da distribuição de traços em toda a extensão desses filmes será feito para obter uma melhor análise de uniformidade.

A análise da uniformidade via CR-39 mostra que, na maioria dos filmes, a distribuição superficial de boro não é uniforme por toda a sua área, mas quando dividimos esta área obtemos alguns setores uniformes. É importante destacar que a concentração que na deposição dos filmes pode ainda ser otimizada. Nas concentrações e condições de irradiação mostradas na Tabela 1, a quantidade de traços resultantes nos detectores foi alta ocasionando sobreposição dos traços, o que nos forçou a trabalhar em situação não ideal de observação. O tratamento químico utilizado foi bem mais fraco que o padrão para minimizar esta sobreposição dos traços, o que poder ter interferido na eficiência de observação.

Como continuação deste trabalho, a metodologia deve ser aprimorada, para obter filmes mais uniformes e com concentrações menores de boro, podendo-se assim desenvolver um método padrão para a confecção de filmes finos de boro para serem utilizados na medida da taxa de reação $^{10}\text{B}(n,\alpha)^7\text{Li}$ na Terapia por Captura de Nêutrons pelo Boro(BNCT).

12. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AMARAL, T.V.P. **Elementos da Química Inorgânica**, ed.8. Rio de Janeiro: Borsoi, 1934. 522 p.

ARAÚJO, G.S. **Estudo dos níveis de emissão do ^{222}Rn de alguns materiais de construção civil e áreas públicas**.2003. Dissertação (Mestrado em Ciências em Engenharia Nuclear) – Faculdade Federal do Rio de Janeiro.

BARTH, R.F., CODERRE, J.A., VICENTE, M.G.H., BLUE, T.E. **Boron Neutron Capture Therapy of cancer: current status and future prospects**. Clin. Cancer. Res. 2005,p.3987-4002, 2005.

BARTH, R.F. **Boron neutron capture therapy at the crossroads: challenges and opportunities**. Appl. Radiat. Isotopes 67, S3-S6, 2009.

BIGAZZI, G., HADLER, J.C., IUNES, P.J., ODONE, M., PAULO, S.R., ZUÑIGA, A. **Absolute thermal neutron fluence determination by thin films of natural uranium**. Nucl. Instrum. Meth. A 352,p. 588-591, 1995.

CARTWRIGHT, B.G., SHIRK, E.K., PRICE, P.B. **A nuclear-track-recording polymer of unique sensitivity and resolution**. Nuclear Instruments and Methods. V. 153, p.457-460, 1978.

COTTON, F. A., WILKINSON, G. **Advanced Inorganic Chemistry**. 6. ed. New York: Wiley-Interscience, 1999.

DURRANI, S.A., BULL, R.K. **Solids state Nuclear Track Detection Principles, Methods and Applications**. vol. 3. London: Pergamon, 1987.

DASGUPTA, D.R., BARNEJEE, B.K. **Study of phase transformation of orthoboric acid by X-ray diffraction method**. J. Chem. Phys., p. 2190- 2191, 1955.

DIAZ, A.Z., CODERRE, J.A., CHANANA, A.D., Ma, R. **Boron neutron capture therapy for malignant gliomas**. Annals of Medicine, Vol. 32, N.1, p. 81-85, 2000.

FLEISCHER, R.L., PRINCE, B.P., WALKER. R.M. **Nuclear tracks in solids: principles and applications**. University of California Press, 1975, 605.p.

HADLER, J. C.;JUNES, P.J., PAULO. S.R. **A possibility of monitoring indoor radon daughters by sing CR-39 as an alpha-spectrometer**. Radiation Mesasurements. Oxford, v.25, p.609-610, 1995.

HARLING, O.K., RILEY, K.J., BINNS, P.J., PATEL, H., CODERRE, J.A. **The MIT user center for Neutron Capture Therapy research**. Radiat. Res.,164, p.221-229, 2005.

MOURA, C.L. **Radioatividade natural e emissão de ^{222}Rn em rochas ornamentais provenientes de diferentes séries magnéticas utilizadas como revestimento interno**. 2005. Tese (Doutorado em Geologia Regional)- Universidade Estadual Paulista, Instituto de Geociências e Ciências Exatas.

SOOMGYI, G. **Development of etched nuclear tracks**. Nuclear instruments and methods, p. 21-24, 1980.

SHEKIN. D.J. **Handbook of Parametric and nonparametric statistical procedures**. 2. ed. Boca Raton: Chapman e Hall/CRC.2000. 982 p.