

APORTES AL DESARROLLO DE UN BLANCO DE PRODUCCIÓN DE NEUTRONES PARA LA TERAPIA POR CAPTURA NEUTRÓNICA EN BORO (BNCT) CON ACELERADORES

M. S. Herrera*¹, D. H. Ziella¹, X. Doligez¹, A. J. Kreiner^{1,2,3}, A. A. Burlon^{1,2} y A. A. Valda^{1,2}.

¹Departamento de Física, Comisión Nacional de Energía Atómica, Av. Gral. Paz 1499 - (1650) - San Martín - Buenos Aires - Argentina.

²Escuela de Ciencia y Tecnología, Universidad Nacional de San Martín, (1650) - San Martín-Buenos Aires-Argentina.

³CONICET, ARGENTINA.

En este trabajo se presentan los estudios realizados para el diseño de un blanco de producción de neutrones que utiliza la reacción ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ para la terapia por captura neutrónica en boro, BNCT, basada en aceleradores. En particular el interés estuvo centrado en la discusión y evaluación de algunas de las dificultades técnicas para la fabricación y operación de un blanco, más específicamente, en su eficiencia neutrónica y en su refrigeración.

In this work we present studies carried out to design a neutron production target based on the reaction ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$ for accelerator-based BNCT. Particularly the interest was centered in the discussion and evaluation of some of the technical difficulties for the production and operation such target, more specifically, in its neutron production efficiency and in its cooling.

I. INTRODUCCIÓN

Se están impulsando internacionalmente y en Argentina estudios sobre la terapia por captura neutrónica en boro (BNCT) basados en la reacción ${}^{10}\text{B}(n,\alpha\gamma){}^7\text{Li}$ en la cual un compuesto borado se incorpora selectivamente a un tumor, con posterior irradiación con neutrones. Una opción prometedora para BNCT se basa en un acelerador de protones o deuterones de baja energía ($E \cong 2.5$ MeV) y alta corriente (20 mA). El haz de protones producido incide sobre un blanco induciéndose así, una reacción nuclear que genera un flujo neutrónico a utilizarse para el tratamiento. Estudios previos^(1,2,3) muestran que un blanco de ${}^7\text{Li}$ es una excelente opción para producir neutrones a través de la reacción ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Ésta es una reacción endotérmica que presenta una energía umbral a 1.88 MeV y una resonancia a 2.25 MeV. Por lo tanto, la energía óptima del protón incidente es de aproximadamente 2.3 MeV⁽¹⁾. Nuestros estudios preliminares muestran que una corriente de protones de 20 mA genera el flujo neutrónico epitérmico requerido para el tratamiento, cuando se utiliza un blanco de litio metálico. La dificultad que se presenta al trabajar con un blanco de litio metálico es que su punto de fusión es bajo (180 °C). La carga térmica sobre el blanco es importante pues se depositan decenas de kW en pocos centímetros cuadrados. Esto plantea cuestiones delicadas en materia de refrigeración del blanco. Por otro lado, existen compuestos refractarios de litio con punto de fusión mucho más elevado, aunque con un menor rendimiento neutrónico. Mostraremos los resultados obtenidos al considerar los compuestos Li_2O , Li_3N , LiH y LiF .

Hemos realizado cálculos que permitieron determinar, a partir de la resolución de la aproximación unidimensional de la ecuación del calor, el salto de temperatura entre las caras del blanco para los diferentes compuestos, la distribución de energía del protón incidente en función de su posición en el blanco y el espesor del mismo.

II. MÉTODOS

Cálculo de la producción neutrónica

La producción total de neutrones por unidad de carga se determina a partir de la sección eficaz de la reacción, σ , del poder de frenado, dE/dx , y de la concentración de átomos de litio en el compuesto, N (cm^{-3}), mediante la siguiente ecuación:

$$I(E_0) = \frac{N}{q} \int_0^{E_0} \frac{\sigma(E)}{\left| \frac{dE}{dx} \right|} dE \quad (1)$$

donde q es la carga elemental y E_0 es la energía del protón incidente.

La ecuación (1) se resuelve numéricamente a partir de los *stopping powers* (poderes de frenado) de cada uno de los diferentes compuestos considerados. En la Figura 1 pueden observarse los resultados obtenidos.

Se obtuvo, en acuerdo con la bibliografía⁽⁴⁾, que el litio metálico es el compuesto que presenta mejor rendimiento neutrónico. A continuación se ubican el hidruro de litio (LiH), y el nitruro de litio

* marietasherrera@yahoo.com.ar

(Li₃N). En este trabajo éstos compuestos no serán considerados debido a su alta reactividad química. Luego se encuentran, en orden decreciente de eficiencia de producción neutrónica, el óxido de litio (Li₂O) y el fluoruro de litio (LiF). Ningunos de estos presentan riesgos ni complicaciones. Si bien el flujo de neutrones es menor que el producido por el litio metálico, puede resultar conveniente trabajar con estos compuestos dependiendo de la corriente máxima que es capaz de producir el acelerador o de la densidad superficial de potencia que entrega el haz.

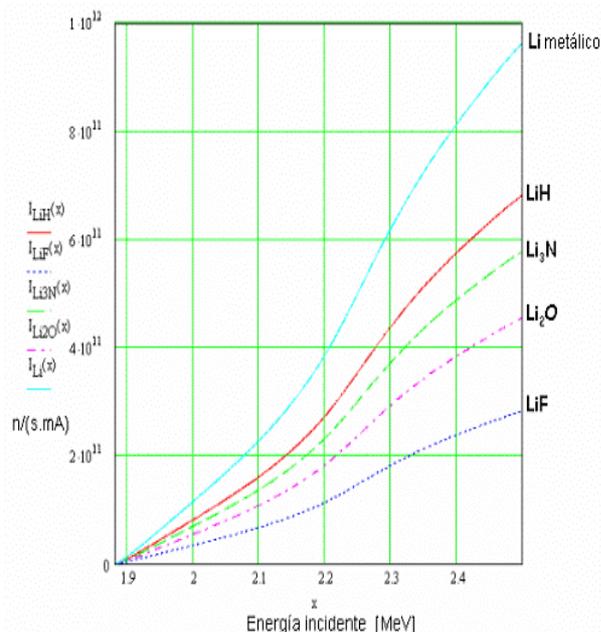


Figura 1. Producción total de neutrones por mA para los distintos compuestos en función de la energía del haz de protones incidente.

La ecuación (1) es válida para un “blanco grueso”, es decir, un blanco de espesor mayor al rango de penetración del haz en él. La ecuación análoga para blancos delgados es:

$$I(E_f) = \frac{N}{q_d} \int_{E_f}^{E_i} \sigma(E) \cdot \left(\frac{dE}{dx} \right)^{-1} \cdot dE \quad (2)$$

donde puede verse que $I(E_f)$ aumenta a medida que se disminuye E_f hasta el umbral de la reacción ${}^7\text{Li}(p,n){}^7\text{Be}$. Esto es claro porque se está integrando una cantidad positiva (por encima del umbral) por lo que al aumentar el intervalo de integración, aumenta la integral. Esto sugiere que, a efectos de aumentar la producción neutrónica, lo ideal es un blanco tal que E_f sea igual a la energía umbral de la reacción.

Por otro lado, conociendo la energía del protón incidente en función de su posición en el blanco se puede determinar el espesor mínimo a tener en cuenta para cada uno de los compuestos (es decir, el espesor de material que degrada la energía del haz

desde su valor inicial hasta el umbral de la reacción). Dichos valores se observan en la tabla 1.

Tabla 1: Espesores mínimos del blanco para los diferentes compuestos para una energía de 2.3 MeV a incidencia normal del haz y a un ángulo $\theta=60^\circ$.

Compuesto	Espesor [μm] $\theta=0$	Espesor [μm] $\theta=60^\circ$
Li	59	30
LiH	31	16
Li ₃ N	24	12
Li ₂ O	16	8
LiF	13	7

Consideraciones térmicas

Una primera aproximación a la descripción del régimen térmico al que se somete al blanco puede lograrse proponiendo que el flujo de calor sobre el mismo tiene lugar en la dirección normal a la superficie sobre la que incide el haz y que solo depende de la coordenada normal a la misma. Esta aproximación conduce a una ecuación diferencial ordinaria de primer orden para la temperatura, T , en función de la profundidad en el blanco, x :

$$\frac{dT}{dx}(x) = \frac{dT}{dx}(0) - \frac{I}{q \cdot \kappa \cdot A} \cdot (E(0) - E(x)) \quad (3)$$

donde I es la corriente de protones incidente, q , κ , y A son la carga del protón, la conductividad térmica del blanco y el área del haz ($A=12 \text{ cm}^2$), respectivamente. Los valores de las conductividades térmicas para cada material y las corrientes de protones consideradas (que son las que hacen que la producción de neutrones sea igual a la dada por un blanco de Li metálico con 20 mA) se especifican en la tabla 2. E es la energía del protón en el blanco, esta última, obtenida a partir de su derivada espacial, el *stopping power* (notar que $E(0)=E_i$). Esta aproximación da, además, una cota superior para el módulo del gradiente de temperatura por lo que da condiciones suficientes para asegurar que el blanco se mantenga por debajo de su temperatura de fusión.

Tabla 2: Valores de punto de fusión, conductividad y corriente utilizados para los diferentes compuestos.

Blanco	Puntos de Fusión [$^\circ\text{C}$]	Conductividad Térmica [W/K m^2]	Corriente incidente [mA]
Li	180	71.2	20
Li ₂ O	1432	3.8*	43
LiF	870	4.01	68

* Este valor corresponde a temperaturas superiores a los 1000 $^\circ\text{C}$.

De la ecuación 3, y teniendo en cuenta que el gradiente es nulo en la cara expuesta al haz ($x=0$), se sigue que:

$$\frac{dT}{dx}(x > R) = -\frac{I \cdot E(0)}{q \cdot \kappa \cdot A} \quad (4)$$

donde R es el rango del haz en el blanco.

Si además tenemos en cuenta que R es despreciable frente a las dimensiones macroscópicas del blanco, la ecuación 3 puede darse por válida para todo valor de x , obteniéndose así, una aproximación para la diferencia de temperatura entre las caras del blanco (compuesto más sustrato) dada por:

$$\Delta T = \frac{I \cdot E(0)}{q \cdot \kappa \cdot A} \cdot \Delta x \quad (5)$$

Estas aproximaciones muestran de manera simplificada que la temperatura decrece entre la superficie sobre la que incide el haz y la interfase blanco/sustrato y entre ésta y la interfase sustrato/agua. Esto sugiere un blanco y un sustrato delgados, tanto como sea posible sin que peligre la estabilidad mecánica del sistema.

En el siguiente gráfico (figura 2) se muestra la temperatura entre las caras del blanco de óxido de litio en función de la profundidad. En la cara del blanco expuesta al haz incidente se ha fijado una temperatura de 1400°C, menor que su punto de fusión (1432°C) y se ha considerado una conductividad térmica del Li_2O ^(5,6,7) de aproximadamente 4W/m²K. De esta manera se representa la situación límite para la cual la demanda sobre la refrigeración es mínima. Bajo estas condiciones el salto de temperatura es de 30°C aproximadamente mientras que para el litio metálico es de 3°C.

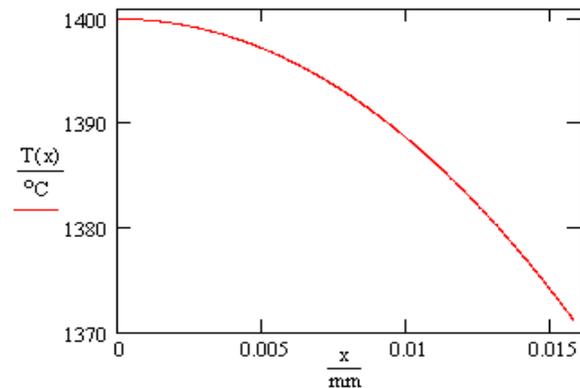


Figura2: Temperatura entre las caras de un blanco de óxido de litio.

El blanco de producción de neutrones utilizado para la terapia de BNCT estará depositado sobre un sustrato. Éste puede ser de cobre por su alta conductividad térmica. Un análisis de los saltos de temperatura (ec. (3)) fue realizado para el sustrato de cobre (tabla 3).

Tabla 3: Salto de temperatura en el sustrato de cobre de 1mm de espesor para incidencia normal del haz y para un ángulo $\theta=60^\circ$.

Compuesto	$\Delta T(\theta=0^\circ)$	$\Delta T(\theta=60^\circ)$
Li	100°C	50°C

Li_2O	215°C	108°C
LiF	338°C	169°C

Otra aproximación al problema del drenaje térmico fue realizada a través del cálculo de la temperatura (figura 3) mediante el software de elementos finitos FemLab⁽⁸⁾. Se resolvió, entonces, la ecuación de transporte de calor para condiciones estacionarias⁽⁹⁾.

$$\nabla^2 T = 0 \quad (6)$$

con las siguientes condiciones de contorno:

- Fuentes de energía: haz de protones de 2.3 MeV y una corriente de 20 mA.

$$\frac{dT}{dn} = -\frac{I \cdot E(0)}{q \cdot \kappa \cdot A} \quad (7)$$

- Refrigeración: agua como fluido refrigerante.

$$h \cdot \Delta T = \kappa \cdot \frac{dT}{dn} \quad (8)$$

- Bordes “inertes” (todos los otros bordes no intercambian calor)

$$\frac{dT}{dn} = 0 \quad (9)$$

En la ecuación (8) se introdujo un modelo que supone una diferencia de temperatura en la interfase agua/sustrato y un “coeficiente de conductividad superficial”, h , análogo al habitual κ .

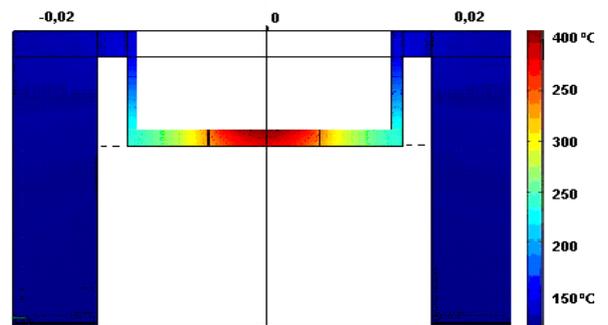


Figura 3: Distribución típica de la temperatura en el cobre. El haz incide desde arriba y en la cara opuesta (inferior) incide el agua de refrigeración.

El coeficiente h depende de la forma del flujo y es obtenido de relaciones empíricas de la forma^(9,10)

$$Nu = C \cdot Re^a \cdot Pr^b \quad (10)$$

donde “Re” es el número de Reynolds, “Pr” el número de Prandtl y “Nu” es el número de Nusselt

$$Nu = \frac{h \cdot d}{\kappa} \quad (11)$$

donde d es una distancia típica del sistema, en este caso, el espesor de la capa de fluido refrigerante (1mm aproximadamente).

La figura 3 representa la pieza de cobre fabricada en el laboratorio para ensayos térmicos de blancos de producción de neutrones, con un haz de electrones operando en alto vacío como herramienta

de simulación experimental de la situación real correspondiente al haz de protones.

De los modelos aproximados introducidos hasta el momento puede obtenerse una fórmula cerrada determinista de la diferencia de temperatura en la interfase sustrato/agua permitiendo así tener completamente determinada (dentro del error producto de las aproximaciones) la temperatura de la cara expuesta al haz del blanco. De la ecuación 8 y la ecuación 4 evaluada en el borde posterior del blanco (interfase sustrato/agua) se sigue que

$$\Delta T = \frac{I \cdot E(0)}{q \cdot h \cdot A} \quad (12)$$

que permite tanto estimar el salto de temperatura en la interfase como estimar los requerimientos a la refrigeración si se proponen fijos ΔT , A y la potencia P ($P = IE(0)/q$) o el área mínima del haz si se fijan ΔT , h y P .

Si definimos la densidad de potencia

$$\rho = \frac{I \cdot E(0)}{q \cdot A} \quad (13)$$

se puede obtener la densidad de potencia máxima si se fija la temperatura máxima (en la cara anterior del blanco) de las ecuaciones 5, 12 y 13 y del hecho de que la temperatura en la cara anterior del blanco es la suma de la temperatura en el fluido refrigerante sumada a los sucesivos saltos de temperatura:

$$\rho = (T - T_0) \cdot \left(\frac{\Delta x}{\kappa} + \frac{1}{h} \right)^{-1} \quad (14)$$

donde T_0 es la temperatura del fluido refrigerante y Δx el espesor del blanco. El diseño más eficiente para la interfase sustrato/agua se basa en microcanales⁽¹¹⁾ para aumentar la superficie de contacto y arroja una conductividad superficial h de 55000W/m²K, lo cual permite disipar como máximo una densidad de potencia de aprox. 620W/cm². Esto requiere una superficie mínima de 80 cm² (5cm de radio) para incidencia normal o de 40cm² (3.5cm de radio) para incidencia a 60 grados, para disipar la potencia total de 48 kW (21 mA y 2.3 MeV) y mantener la capa de litio en estado sólido.

III. CONCLUSIONES

El material más eficiente en cuanto a la producción de neutrones es el litio metálico pero su punto de fusión es muy bajo con lo cual se presentan dificultades a la hora de mantener el blanco en estado sólido. Se ha mostrado, sin embargo, que es posible disipar la potencia requerida para BNCT manteniendo un blanco metálico de Li sobre un sustrato de cobre de 1mm de espesor sin fundirse.

Aunque el óxido de litio (Li₂O) y el fluoruro de litio (LiF) tienen un rendimiento neutrónico menor, fueron considerados ya que no presentan riesgos ni complicaciones desde un punto de vista químico y biológico. Si bien el LiF produce un flujo tres veces menor que el litio, y el Li₂O dos veces menor, puede resultar apropiado trabajar con éstos compuestos debido a su elevado punto de fusión (845°C y 1432°C respectivamente). Puede llegar a obtenerse el mismo flujo de neutrones con una corriente mayor en la medida en que la misma no sea una limitante. La máxima densidad de potencia soportable por un blanco de fluoruro (óxido) de litio como blanco no es calculable por los medios expuestos ya que lleva a un régimen en el que el agua utilizada como refrigerante entra en ebullición y deja de ser descripta por el modelo utilizado.

Se ha comenzado a trabajar en experimentos que utilizan haces intensos de electrones para testear las simulaciones numéricas.

Referencias

- 1 - Burlon A.A., Kreiner A.J, Valda A.A, Minsky D.M., Somacal H.R, Debray M.E, Stoliar P. "Optimization of a neutron production target and beam shaping assembly based on the $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$ reaction for BNCT", Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B, **229** 144-156 (2005).
- 2 - C.K. Wang, T.E. Blue y R. Gahbauer. "A neutronic study of an accelerator-based neutron irradiation facility for boron capture therapy", Nuclear Technology, **84**, 93-107 (1989).
- 3 - J.C. Yanch, X.L. Zhou, R.E. Shefer, R.E. Klinskowstein, "Accelerator-based epithermal neutron beam design for neutron capture therapy". Med. Phys. **19**, 709-721 (1992).
- 4 - C. Lee, X.-L. Zhou, Nucl. Instr. and Meth. B **152** (1999).
- 5 - "Modelling Analysis and Experiments for Fusion Nuclear Technology". FNT Progress Report: Modellind and Finesse. Cap. 2.2 (1987).
- 6 - "Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials", Cap. 4 parte 1, 232-238.
- 7 - Solid Tritium Breeder Materials Li₂O and LiAlO₂: A Data Base Review, 1976 (Abril 4, 1985).
- 8 - <http://www.comsol.com>
- 9 - "Ecuaciones de la Física Matemática", S.K.Godunov, Ed. MIR, Moscú (1978), pag.36
- 10 - B. Bayanov, V. Belov, V. Kindyuk, E. Oparin, S. Taskaev. Applied Radiation and Isotopes, **61**, 817 - 821 (2004).
- 11 - H. Hirshfeld, I. Silverman, A. Arenshtam, D. Kijel, A. Nagler, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A **562**, 903-905 (2006).