

Tese de Mestrado

Anisotropia na eficiência de detecção de fragmentos
de fissão de Urânio na mica muscovita.

Candidato: Eliana Maria Clocchetti Zago

Orientador: Prof. Dr. Cesare M. G. Lattes

1977

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS
INSTITUTO DE FÍSICA
BIBLIOTECA

Ao Alfredo,

pelo apoio humano.

Agradecimentos

Ao CNPq e à FAPESP, pelas bolsas que nos concederam.

Cabe aqui colocarmos as condições positivas que permitiram a realização deste trabalho e agradecermos aos responsáveis pela criação das mesmas.

Sempre encontramos no laboratório um clima de respeito, colaboração e amizade; um clima adequado ao trabalho. Os grandes responsáveis por esse clima foram todos os seus membros.

Todas as nossas interações não foram meramente profissionais e sim, mais profundas.

O apoio que recebemos do Juvenal pela assistência técnica, do Edécio pelo trabalho de secretaria, da Marilena pela datilografia e da Divanilde na realização de medidas, sempre superou o nível da mera obrigação.

O prof. Martins, que nos aproximou do grupo, releveu uma preocupação pessoal com o nosso futuro.

A Dinah, amizade já antiga, e o Julio foram companheiros - com os quais discutimos questões relativas ao trabalho e que colaboraram tecnicamente conosco.

Com o Bigazzi tivemos uma curta interação, porém de intensa repercussão, tanto no nosso trabalho quanto no ambiente em que vivíamos. Foi com ele que aprendemos o manuseio do microscópio e demais aspectos técnicos necessários a realização das medidas. Além de discussões e sugestões, também nos forneceu parte dos dados. Bigazzi é uma dessas pessoas que vale a pena conhecer.

O Alfredo, enquanto nos incentivava a continuar o trabalho, colaborava com críticas, discussões e sugestões, preciosas.

Falta falarmos de um amigo, nosso orientador Lattes.

Ao prof. Wataghin, pela presença no laboratório.

Eliana

I - INTRODUÇÃO

O presente trabalho é um estudo da mica muscovita enquanto detetor de traços de fissão de Urânio.

A mica muscovita é utilizada como detetor para fissão em vários problemas como datação, dosimetria e determinação da quantidade de Urânio em minerais, desde quando, em 1962, Price e Walker propuseram uma técnica para a revelação e fixação dos traços provocados pela fissão (Ref. 1). Essa técnica consiste em se submeter as amostras de mica a ataque químico com ácido fluorídrico (HF) à concentração, temperatura e por tempo convenientes (Ref. 1). O ácido ataca preferencialmente as regiões danificadas pela fissão o que traz como consequências a fixação dos traços e a possibilidade de observá-los ao microscópio óptico, circunstância relevante, uma vez que a observação ao microscópio eletrônico provoca o desaparecimento dos danos quando se aumenta a intensidade do feixe (fading) (Ref. 2).

No curso do desenvolvimento dessa técnica, numerosos problemas tiveram de ser resolvidos até que um mínimo de confiabilidade pudesse ser dispensado a esse detetor, tais como:

- 1) cinética dos traços, i.e., a variação da largura e do comprimento dos traços com o tempo de ataque (Ref. 1 e 3);
- 2) estudo da estrutura da região danificada, i.e., observações sobre o padrão de difração dos traços afim de determinar se consistem de nova fase cristalina ou de uma região desordenada (Ref. 1);
- 3) ionização crítica, i.e., o limiar da perda de energia por comprimento abaixo da qual a observação dos traços pelo ataque químico não é possível (Ref. 4).

Resíduos de Urânio encontrados comumente em micas, (1/10⁹ em muscovita), aliados ao sucesso naqueles desenvolvimentos, tornaram estes minerais particularmente atrativos para programas de datação a partir da fissão espontânea do U²³⁸ (refs. 3,5,6 e Apêndice 1); nesse contexto o problema do comportamento das imagens latentes face a tratamentos térmicos do mineral adquiriu particular importância, dadas as suas implicações no resultado das datações (Ref. 5,7 e 8).

Discussões importantes tem surgido principalmente sobre:

- a) efeitos de envelhecimento dos traços de fissão, i.e., encurtamento progressivo da porção revelável com a idade, e a possibilidade de minimizar esses efeitos por tratamento químico adequado;
- b) sobre o desaparecimento completo das imagens por efeitos de recozimento a altas temperaturas durante a vida do mineral;
- c) sobre se o mineral constitui um sistema "fechado" para seu conteúdo de Urânio, em relação à vizinhança química, desde o momento da sua formação.

A mica muscovita(KAL₂AlSi₃O₁₀(OH)₂) pode ser datada diretamente pelos métodos do K-Ar e do Rb-Sr ou indiretamente, por outros métodos, aplicáveis a materiais vizinhos no sítio geológico onde foi recolhida. A lista de estimativas de idade com resultados controversos, no confronto dos vários métodos, é bastante longa, dando margem, em alguns casos, que a suspeita recaia sobre a datação pela fissão do urânio na muscovita (Ref. 9).

Nessas condições buscamos reavaliar as potencialidades da mica muscovita como detetor de traços de fissão a partir de primeiros princípios, isto é, de observações sobre sua eficiência de detecção.

Para tanto submetemos amostras de várias procedências a diferentes condições de ataque químico, revelando tanto fissões fósseis, isto é, oriundas dos resíduos de Urânio encontrado natu-

ralmente nas micas, como também fissões induzidas, submetendo previamente as amostras ao fluxo de neutrons térmicos em reatores. As distribuições angulares dos traços foram levantadas nos dois casos, para as diferentes amostras e em todas se mostraram anisotrópicas.

Isto significa que há direções preferenciais para a detecção de fragmentos de fissão pela mica, ou seja, que sua eficiência de detecção não é 100%, tanto para traços fósseis como para induzidos. Mostramos entretanto, que esse efeito não altera a relação entre o número revelado de fissões fósseis e induzidas, sendo portanto irrelevante do ponto de vista da aplicação da mica muscovita à datação de minerais (Apêndice 1).

O efeito observado apresenta um comportamento que sugere a intervenção de propriedades estruturais da mica muscovita - nos mecanismos de sensibilização e/ou revelação dos traços.

II - MÉTODO EXPERIMENTAL

II.1 - Instrumento de detecção

O instrumento de detecção utilizado, como já dissemos, foi a mica muscovita que é um silicato com estrutura cristalina monoclinica, com plano de clivagem 001.

Quando partículas pesadas e carregadas atravessam a mica há uma alteração na região do sólido nas vizinhanças das trajetórias dessas partículas formando uma imagem latente passível de revelação (traço).

Esses traços podem ser fotografados ao microscópio eletrônico ou alargados por processo químico até tamanhos passíveis de serem vistos ao microscópio óptico.

A observação ao microscópio eletrônico se apresenta com grandes dificuldades pois os traços são instáveis na presença do feixe eletrônico, sendo visíveis por muito pouco tempo. Para se diminuir essa instabilidade é necessário fazer-se a observação a baixas temperaturas.

O método da revelação química dos traços sana essas dificuldades pois fixa a imagem e possibilita a observação dos mesmos em um simples microscópio óptico.

A possibilidade de revelação dos traços está ligada com a perda de energia por unidade de comprimento (dE/dx) da partícula que provoca o dano. É possível se determinar, para um dado detetor, um valor crítico de dE/dx abaixo do qual o dano provocado não pode ser revelado pelo ataque químico.

Esse valor para a mica muscovita é de aproximadamente $12 \text{ MeV} \times \text{cm}^2/\text{mg}$ (Ref. 4). Analisando-se os espectros de dE/dx dos fragmentos de fissão é fácil concluir que a mica é um bom detetor para esses fragmentos. Essa característica permitiu, já que a mica muscovita contém uma pequena quantidade de urânio, estabelecer-se um método de datação que utiliza a fissão espontânea do U^{238} ocorrida durante a existência do mineral (Apêndice 1 e ref. 3, 5 e 6).

Para tal finalidade nosso laboratório possui uma coleção de micas muscovitas de várias procedências que se acham arquivadas e recebem números para fins de identificação.

No nosso trabalho utilizamos algumas dessas amostras , escolhidas arbitrariamente, tais sejam:

muscovita	Procedência	Idade (anos)
0001	Rodésia-África	578×10^6
0029	India	$\sim 530 \times 10^6$
0036	Desconhecida	$\sim 700 \times 10^6$
0038	Desconhecida	$\sim 500 \times 10^6$
0155	Desconhecida	$\sim 1800 \times 10^6$

Estas medidas foram realizadas no nosso laboratório pelo método de traços de fissão, com exceção da primeira que foi feita pelo método do Rb-Sr. Essa amostra também foi datada por traço de fissão e conseguiu-se o valor 575 m.a. (G. Bigazzi - Pisa Itália)

II.2 - Revelação. Ataque químico.

Para a revelação e fixação dos traços de fissão em micas muscovitas utilizou-se a técnica do ataque químico que consiste em se imergir as amostras (folhas separadas ao longo do plano de clivagem) em um reagente sob condições adequadas.

O reagente comumente utilizado para micas muscovitas é o ácido fluorídrico. Retirada a amostra do banho termostatizado de ácido neutraliza-se em solução de bicarbonato de sódio e lava-se em água corrente. Assim as regiões danificadas pelos fragmentos de fissão são seletivamente atacadas, ficando mais opacas. Esse processo de ataque pode ser dividido em 3 estágios:

- imediatamente após a imersão da amostra o ácido penetra na região danificada e reage com o material que a constitui produzindo um canal bem definido.

- com o aumento do tempo de ataque a extensão da imagem da zona danificada, tanto no seu comprimento (ao longo do dano) quanto na sua largura (transversalmente), se modifica. A modificação da extensão longitudinal se faz em tempos muito mais curtos que o alargamento lateral, de modo que a direção da trajetória da partícula fica rapidamente determinada (Ref. 3).

Inicialmente, a razão de crescimento da largura é muito pequena.

Aparece um "tempo de incubação" antes que o ácido comece a dissolver a mica vizinha ao canal inicial (refs. 1 e 3)

- num 3º estágio a razão de alargamento do canal fica constante.

Continuando-se o ataque por muito tempo a superfície da mica ficará muito alterada apresentando fendas que poderão proporcionar ataque em outros planos de clivagem (ref. 3).

As características do ataque dependem, além da duração, da concentração e temperatura do reagente e da reatividade da amostra.

Nesse trabalho utilizamos duas condições para o ataque tais sejam:

- $C_{HF} = 40\%$, $T_a = 40^{\circ}C$ (C_{HF} = Concentração do HF)
- $C_{HF} = 50\%$, $T_a = 15^{\circ}C$ (T_a = Temperatura do ataque)

O procedimento para a escolha das condições de ataque é bastante empírico e no nosso caso dados sobre disponibilidade comercial e fatores de ordem prática, como segurança pessoal, foram determinantes.

Certos aspectos sobre o ataque preferencial tornam-se mais claros mediante o exame da evolução no tempo da densidade superficial dos traços.

As figuras 1,2 e 3 nos mostram a variação da densidade superficial de traços, ρ , com o tempo de duração do ataque, t .

As curvas $\rho \times t$ apresentam uma região onde a densidade dos traços cresce rapidamente e um patamar de saturação.

Para interpretar essa figura deve-se lembrar que:

- O dano na região alterada pela passagem do fragmento de fissão é função da perda de energia por unidade de comprimento (dE/dx) do fragmento.
- há um valor crítico para a perda de energia por unidade de comprimento para o fragmento de fissão abaixo do qual o traço não é revelado.

Um plano de clivagem qualquer, colocado em contacto com o ácido, apresentará traços de fissões que ocorreram em diversas alturas e em diferentes ângulos zenitais, sendo que para um dado ângulo θ , a máxima distância da superfície onde pode ocorrer uma fissão que possa ser revelada é: $z_{\max} \approx \bar{R} \cos \theta$ onde $\bar{R}$ é o alcance médio de um dos fragmentos (Apêndice 2).

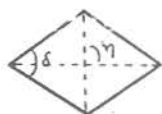
Assim, para cada ângulo θ , chegarão à superfície em análise fragmentos com vários dE/dx , levando portanto tempos diferentes de revelação para serem observados nas condições ópticas utilizadas. É evidente que os traços revelados são aqueles provocados por fragmentos que chegaram à superfície analisada com dE/dx maior ou igual à (dE/dx) crítico. Passará um certo intervalo de tempo para que os traços possíveis de revelação estejam em condições de observação; estaremos então no patamar de saturação.

Cabe colocar que existe uma velocidade de ataque do ácido na região não alterada da mica, provocando então um abaixamento na superfície da mica. Isso provocará o aparecimento de novos traços que não haviam atingido a superfície inicial, e também o desaparecimento dos traços que vinham da parte de cima do plano de clivagem atacado e que tinham uma pequena parte do seu total dentro da parte da mica colocada no ácido.

II.3 - Aspectos estruturais da imagem óptica dos canais

Os traços de fissão na mica muscovita, depois de revelados por ataques químicos de longa duração (já próximo ao patamar de saturação - ver seção II.2), possuem a forma de um prisma inclinado (obviamente podemos ter prismas retos se a fissão ocorrer na direção perpendicular ao plano de observação ao microscópio que é o plano de clivagem 001). A seção horizontal (no plano de clivagem) desse prisma é um paralelogramo.

Seja δ o ângulo formado pelos lados desse paralelogramo e η o ângulo entre suas diagonais. Esses ângulos foram medidos experimentalmente e obteve-se os seguintes resultados, levando-se em conta medidas realizadas em várias amostras, em traços fósseis e induzidos:



$$\delta = 67^{\circ} \pm 2^{\circ}$$

$$\eta = 92^{\circ} \pm 2^{\circ}$$

O comprimento longitudinal dos traços depende das condições do ataque químico e da natureza dos traços. Os traços fósseis são mais curtos que os traços induzidos devido ao efeito de envelhecimento, i.e., restauração da rede cristalina (danificada pela fissão) ao longo da "vida" do mineral. O comprimento dos traços fósseis dependerá portanto da amostra.

As dimensões dos lados e das diagonais tem também, naturalmente, dependência com as condições de ataque. Para um ataque com HF de concentração 50% à 15°C por 3 h (vide fig. 1) teremos, para as dimensões dos lados e das diagonais, respectivamente:

$$(4,888 \pm 0,040) \mu \text{ e } (6,668 \pm 0,056) \mu \text{ para os lados}$$

$$(9,749 \pm 0,062) \mu \text{ e } (6,903 \pm 0,037) \mu \text{ para as diagonais}$$

Esses dados se referem à amostra 0001.

II.4 - Busca de eventos . Medidas.

Para a determinação da densidade superficial de traços utilizamos normalmente objetivas de aumento 25X ou 45X. No plano - objeto da ocular colocamos um lâmina de vidro plano no qual se inscreve o contorno de um quadrado que entra em foco simultaneamente com o objeto, e serve para definir os contornos dos campos de busca. O lado do quadrado é aferido com uma escala padrão e daí calculada sua área. São contados os traços que estão dentro do quadrado, assim entendidos apenas aqueles que tiverem sua seção horizontal contida na área limitada pelo quadrado.

Os que tiverem essa seção horizontal sobre os limites do quadrado são contados como $1/2$. Faz-se a busca dos eventos varrendo-se a amostra e tomando os devidos cuidados para não se contar mais de uma vez os mesmos traços (por exemplo, fazendo a contagem em campos disjuntos).

A medida dos ângulos azimutais é feita utilizando-se ocular goniométrica. Em geral desenha-se uma cruz na nica com um estilete que servirá de referencial para a busca dos traços, e reproduz-se em papel a imagem dos mesmos, fazendo-se portanto um mapa dos eventos. Isso facilita a observação e diminui a probabilidade de perda dos traços. Para traços sem profundidade ou para os que estão a 90° da superfície não é possível se medir o ângulo azimutal.

III - APRESENTAÇÃO DOS RESULTADOS

A hipótese a ser testada neste trabalho, como já dissemos na introdução é a da isotropia dos traços de fissão revelados em micas muscovitas, em vista da isotropia da fissão.

Para tal foram analisadas lâminas de diversas procedências, submetidas a diferentes condições de ataque. Nessas lâminas foram estudados os traços de fissão tanto do U^{238} (fissão espontânea-traços fósseis) como do U^{235} (fissão induzida). Para se obter a fissão induzida do U^{235} as lâminas foram submetidas a irradiações com neutrons térmicos no reator do Instituto de Energia Atômica em São Paulo e no reator CAMEN em Roma.

Para cada amostra foi medido o ângulo azimutal dos traços colocando-se os resultados em histogramas. A origem, para as medidas dos ângulos azimutais é arbitrária. São apresentados também os diagramas integrais correspondentes aos histogramas e na maioria dos casos deslocou-se a origem do gráfico integral (mediante deslocamento paralelo da reta esperada teoricamente caso a distribuição fosse isotrópica) a fim de evidenciar o fenômeno observado.

Resumindo, os resultados obtidos são os seguintes:

- 1) Lâmina da amostra 0001 submetida a ataque químico com HF 40% a 40°C por 5 min. Nesse tempo de ataque ainda não foram revelados todos os traços (vide fig. 3 - curva de densidade). Obteve-se a distribuição dos traços fósseis (U^{238}) em função do ângulo azimutal, integrada no zenital. O histograma e o diagrama integral estão apresentados na Fig. 4.

- 2) A mesma lâmina foi submetida a um novo ataque químico com HF 40% à 40°C por 10 min. completando um total de 15 min. de ataque, tempo no qual a densidade de traços praticamente atingiu o patamar de saturação. Novos traços foram revelados e obteve-se a nova distribuição cujo histograma e o diagrama integral estão apresentados na figura 5. Foram também assinaladas as direções dos lados e das diagonais da seção horizontal dos traços as quais estão ligadas à estrutura cristalina da mica.
- 3) Lâmina da amostra 0001 submetida à irradiação de neutrons térmicos e atacada com HF 40% à 40°C por 30'. (atingido o patamar de saturação na densidade de traços). Foi estudada a distribuição dos traços de fissão induzida do U^{235} ; o histograma e o diagrama integral são apresentados na figura 6.
- 4) Lâmina da amostra 0155 submetida à ataque químico com HF 40% à 40°C por 30'. Foi estudada a distribuição dos traços fósseis em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão representados na figura 7.
- 5) Lâmina da amostra 0155 submetida à irradiação com neutrons térmicos e a um ataque químico com HF 40% à 40°C por 30 min. Foi estudada a distribuição dos traços induzidos em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão apresentados na figura 8.
- 6) Lâmina da amostra 0038 (Comercial) submetida a ataque químico com HF 40% à 40°C por 30 min. . Foi estudada a distribuição dos traços fósseis em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão representados na figura 9.

- 7) Lâmina da amostra 0038 submetida à irradiação com neutrons térmicos e a ataque químico com HF 40% à 40°C por 30 min. Foi estudada a distribuição dos traços induzidos em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão apresentados na figura 10.
- 8) Lâmina da amostra 0001 submetida a ataque químico com HF 50% à 15°C por 2 horas. Foi estudada a distribuição dos traços - fósseis em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão apresentados na figura 11.
- 9) Lâmina da amostra 0001 submetida a ataque químico com HF 50% à 15°C por 2 horas. Foi estudada a distribuição dos traços - induzidos em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão apresentados na figura 12.
- 10) Lâmina da amostra 0036 submetida a ataque químico com HF 50% à 15°C por 2 horas. Foi estudada a distribuição dos traços - fósseis em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama estão apresentados na figura 13.
- 11) Lâmina da amostra 0036 submetida à irradiação com neutrons térmicos e a ataque químico com HF 50% à 15°C por 2 horas. Foi estudada a distribuição dos traços induzidos em função do ângulo azimutal; o histograma e o diagrama integral estão apresentados na figura 14.

IV - Discussão e conclusões

1. Na apresentação dos resultados foram mostrados os histogramas e os diagramas integrais para os dados colhidos em várias amostras sobre traços fósseis e induzidos. Estes dados já nos fornecem uma primeira evidência, embora qualitativa, da anisotropia na distribuição angular dos traços revelados: os histogramas apresentando picos e vales e os diagramas integrais revelando comportamento assimétrico em todos os casos, tendo aproximadamente a mesma forma geral, forma essa que não é a esperada para uma distribuição angular uniforme.

Aplicando o teste do χ^2 para as distribuições angulares dos traços nas amostras onde as condições de ataque levam a densidade de traços ao patamar de saturação (ver seção II-2) encontraremos os seguintes resultados: (Tabela 1)

Dentro dos níveis de significância usualmente adotados, o teste do χ^2 para todas as amostras, rejeita a hipótese da isotropia para a distribuição angular, reafirmando a evidência qualitativa anteriormente observada.

Para salientar a anisotropia apresentamos na fig.15 o histograma da distribuição dos traços em função do ângulo azimutal, histograma este obtido somando-se os dados relativos a 10 diferentes observações correspondentes às amostras analisadas em várias condições de ataque. Para cada amostra foram colocadas as distribuições dos traços fósseis e dos induzidos. As origens de cada distribuição foram feitas coincidentes tomando-se como referência a diagonal maior da seção horizontal do traço. Este histograma apresenta uma forte anisotropia; aplicando-se o teste do χ^2 encontramos que esta distribuição se afasta de uma distribuição isotrópica por 13 desvios padrão.

TABELA 1

Teste do χ^2 (intervalo de 20°)

amostra	condição de ataque	tipo de traço	P (%)*
0001	HF 40% 40°C 30'	induzido	$1 > P > 0,1$
0001	HF 40% 40°C 15'	fóssil	$5 > P > 2$
0038	HF 40% 40°C 30'	induzido	$P < 0,1$
0038	HF 40% 40°C 30'	fóssil	$P < 0,1$
0155	HF 40% 40°C 30'	induzido	$P < 0,1$
0155	HF 40% 40°C 30'	fóssil	$P < 0,1$
0001	HF 50% 15°C 2 h	induzido	$P < 0,1$
0001	HF 50% 15°C 2 h	fóssil	$1 > P > 0,1$
0036	HF 50% 15°C 2 h	induzido	$2 > P > 1$
0036	HF 50% 15°C 2 h	fóssil	$5 > P > 2$

* P = nível da porcentagem da distribuição χ^2 com 17 graus de liberdade.

Para dar uma descrição quantitativa da anisotropia implícita no resultado do teste, fizemos a análise harmônica dos dados (ver Apêndice 3) e obtivemos os resultados apresentados nas figuras de 16 a 21 e na tabela 2. Nessa tabela os resultados são aqueles obtidos com os dados brutos, ou seja, com a origem arbitrária da observação ao microscópio.

Na figura 16-a temos o histograma normalizado da distribuição angular dos traços fósseis numa amostra submetida a um ataque em condições tais que a densidade de traços ainda não atingiu o patamar de saturação. Apresentamos a curva soma das harmônicas cujo coeficiente seja maior que o erro (linha cheia) e a primeira harmônica (linha tracejada) que é muito forte.

Submeteu-se essa mesma amostra a um novo ataque (Fig. 16.b); estaremos agora aproximadamente no patamar de saturação. Poderemos notar pela Fig. 16.b que a primeira harmônica (linha tracejada) diminuiu, porém o aspecto geral da curva soma das harmônicas significativas permanece o mesmo. Vê-se também que as direções dos lados e das diagonais da seção horizontal dos traços (ver seção II-3), marcados na fig. 16.b, estão ligados com as direções onde há picos ou vales. Mais explicitamente, nas diagonais temos vales, nos lados temos picos.

Na Fig. 17.a reproduzimos novamente a distribuição dos traços fósseis para efeito de comparação com a distribuição dos induzidos apresentada na figura 17.b. Essa distribuição é feita com os dados obtidos em lâmina da mesma amostra submetida a ataque em condições tais que a densidade dos traços também está no patamar de saturação. Podemos observar uma forte semelhança entre as análises harmônicas dos dois conjuntos de dados, inclusive com a mesma relação entre os picos e vales e as direções características do cristal (direções dos lados e das diagonais da seção horizontal).

Fazendo a mesma análise para outras amostras também submetidas às mesmas condições de ataque, encontraremos resultados análogos, tal como podemos observar nas figuras 18 e 19.

Tabela 2

amostra e tipo de traço	ataque	1ª harmônica		2ª harmônica		3ª harmônica		4ª harmônica		5ª harmônica	
		coef.	fase/°	coef.	fase/°	coef.	fase/°	coef.	fase/°	coef.	fase/°
0001 fóssil	* 5'	0,49±0,07	220±8					0,22±0,07	58±5	0,08±0,07	18±9
0001 fóssil	*15'	0,17±0,06	232±20	0,06±0,06	76±29			0,10±0,06	64±9	0,154±0,06	20±4
0001 induzido	*30'	0,19±0,06	37±19	0,08±0,06	41±21			0,12±0,06	44±7	0,12±0,06	50±6
0038 fóssil	*30'	0,19±0,06	95±18	0,06±0,06	74±29			0,34±0,06	25±3	0,11±0,06	7±6
0038 induzido	*30'	0,23±0,06	315±15	0,12±0,06	86±15	0,17±0,06	39±7	0,18±0,06	39±7	0,18±0,06	36±4
0155 fóssil	*30'	0,13±0,06	257±28	0,10±0,06	165±17	0,19±0,06	97±6	0,20±0,06	27±4	0,10±0,06	67±7
0155 induzido	*30'	0,17±0,06	240±20			0,17±0,06	105±7	0,26±0,06	33±4	0,06±0,06	14±11
0001 fóssil	** 2h	0,13±0,06	240±26			0,13±0,06	30±9	0,17±0,06	80±5		
0001 induzido	** 2h	0,12±0,06	247±30	0,14±0,06	179±12	0,11±0,06	99±11	0,13±0,06	8±7		
0036 fóssil	** 2h			0,22±0,06	101±8			0,18±0,06	84±5	0,13±0,06	43±6
0036 induzido	** 2h	0,13±0,06	174±26			0,09±0,06	80±13	0,15±0,06	88±6	0,12±0,06	53±6

* - HF 40% 40°C

** - HF 50% 15°C

Na fig. 18.a e b encontramos respectivamente as distribuições dos traços fósseis e dos induzidos para a amostra 0155. As curvas correspondentes às sínteses das análises harmônicas - são semelhantes, guardando as mesmas relações entre picos e vales e direções dos lados e das diagonais.

Para a amostra 0038 podemos fazer as mesmas observações mediante as figuras 19.a e 19.b.

Analisando amostras submetidas a uma outra condição de ataque, onde a densidade de traços atingiu o patamar - de saturação, obtemos resultados análogos. Assim na figura 20 podemos ver as distribuições dos traços fósseis e induzidos para a amostra 0001 e na fig. 21 as mesmas distribuições, para amostra 0036. Novamente as duas distribuições, para fósseis e para induzidos, são semelhantes, e os picos e vales guardam as mesmas relações com os lados e as diagonais que nas amostras anteriormente analisadas.

Esses resultados nos levam a crer que as distribuições dos traços fósseis e dos traços induzidos tem o mesmo comportamento.

Reforçando esta conclusão temos o que nos mostra o gráfico da fig. 22 onde estão representadas as curvas da soma das harmônicas significativas para todas as amostras analisadas (em nº de 5), para os traços fósseis e para os induzidos. Nessa figura vemos uma nítida correlação entre as duas curvas o que revela a semelhança de comportamentos entre as duas distribuições.

Na fig. 22 fez-se coincidir a origem de todas as distribuições com a diagonal maior do paralelogramo típico do traço. A primeira harmônica serviu para a orientação na escolha dessa diagonal em - cada amostra, uma vez que poderíamos cometer um erro de 180° .

Para comparar cada uma das harmônicas das várias distribuições, para os traços fósseis e para os induzidos, determinamos os valores médios dos coeficientes maiores que o erro e das fases das res

pectivas harmônicas e obtemos os resultados sintetizados na tabela 3.

Os erros colocados são os intrínsecos às medidas experimentais.

Estes resultados nos mostram uma ótima concordância entre as análises harmônicas dos traços fósseis e dos traços induzidos, ou seja, a anisotropia não se comporta de modo a desfavorecer a observação de uma das categorias de traços com relação à outra, na sua correlação ângulo a ângulo.

Tabela 3

		fósseis	induzidos
1 ^a harmônica	fase φ_1	$311^\circ \pm 22^\circ$	$332^\circ \pm 19^\circ$
$1 + a_1 \cos(\varphi - \varphi_1)$	coeficiente a_1	$0,16 \pm 0,06$	$0,18 \pm 0,06$
2 ^a harmônica	fase φ_2	$100^\circ \pm 16^\circ$	$108^\circ \pm 16^\circ$
$a_2 \cos 2(\varphi - \varphi_2)$	coeficiente a_2	$0,11 \pm 0,06$	$0,11 \pm 0,06$
3 ^a harmônica	fase φ_3	$89^\circ \pm 7^\circ$	$81^\circ \pm 8^\circ$
$a_3 \cos 3(\varphi - \varphi_3)$	coeficiente a_3	$0,16 \pm 0,06$	$0,14 \pm 0,06$
4 ^a harmônica	fase φ_4	$47^\circ \pm 4^\circ$	$41^\circ \pm 5^\circ$
$a_4 \cos 4(\varphi - \varphi_4)$	coeficiente a_4	$0,20 \pm 0,06$	$0,17 \pm 0,06$
5 ^a harmônica	fase φ_5	$31^\circ \pm 6^\circ$	$33^\circ \pm 7^\circ$
$a_5 \cos 5(\varphi - \varphi_5)$	coeficiente a_5	$0,11 \pm 0,06$	$0,10 \pm 0,06$

2. Nossos resultados são portanto consistentes com a presença de uma acentuada anisotropia, afetando tanto a distribuição em ângulo azimutal dos fragmentos de fissões fósseis como a de fissões induzidas. A presença de vales e picos nas distribuições em ângulo azimutal sempre correlacionados com as mesmas direções, sugere fortemente que estão escapando à detecção fragmentos emitidos em direções relacionadas a eixos característicos da mica-muscovita. A eficiência da mica, enquanto detetor para fragmentos de fissão, estaria assim bastante abaixo daqueles 100% usualmente admitidos. Nossos resultados mostram igualmente que essa circunstância afeta na mesma medida tanto os registros dos fragmentos de fissão fóssil como os de induzida; é fácil ver (Apêndice 1) que tal comportamento não introduz desvios sistemáticos nas estimativas de idades de minerais pelo método ali descrito.

Desejamos esclarecer que nas condições de ataque utilizados não é possível medir o ângulo azimutal dos traços muito curtos (de 20 a 30%). Comentamos apenas, nesse particular, que se esses traços fossem responsáveis pela anisotropia observada, deveriam apresentar uma anisotropia complementar daquela, fato em si tão estranho quanto aquele.

Entretanto uma discussão sobre a eficiência de detecção da mica não pode dispensar comentários sobre o comportamento da distribuição angular zenital. Temos então na fig. 23, apresentadas as distribuições angulares zenitais (as distribuições estão colocadas em $\sin^2 \theta$ pois deveriam ser uniforme nessa variável se os traços se distribuíssem isotropicamente no ângulo sólido (Apêndice 2)) para a amostra 0001 - traços fósseis, para diferentes tempos de ataque. Na primeira figura a densidade de traços não se encontra no patamar de saturação e observa-se uma acentuada

anisotropia. Já na segunda figura a amostra sofreu um novo ataque e estamos no patamar de saturação da densidade; observamos ainda uma anisotropia porém menor que a anterior, fenômeno semelhante ao observado para as distribuições azimutais apresentadas nas figuras 15a e 15b.

Fazendo um ajuste tipo $N(1 + a \cdot \sin^2 \theta)$ encontramos $a=0,34$. Isso significa que temos uma perda da ordem de 30% na distribuição zenital.

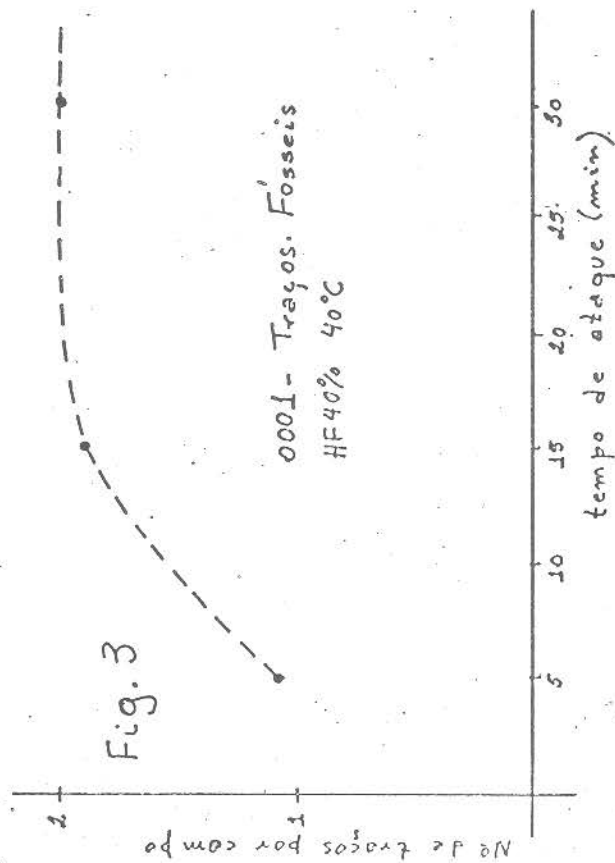
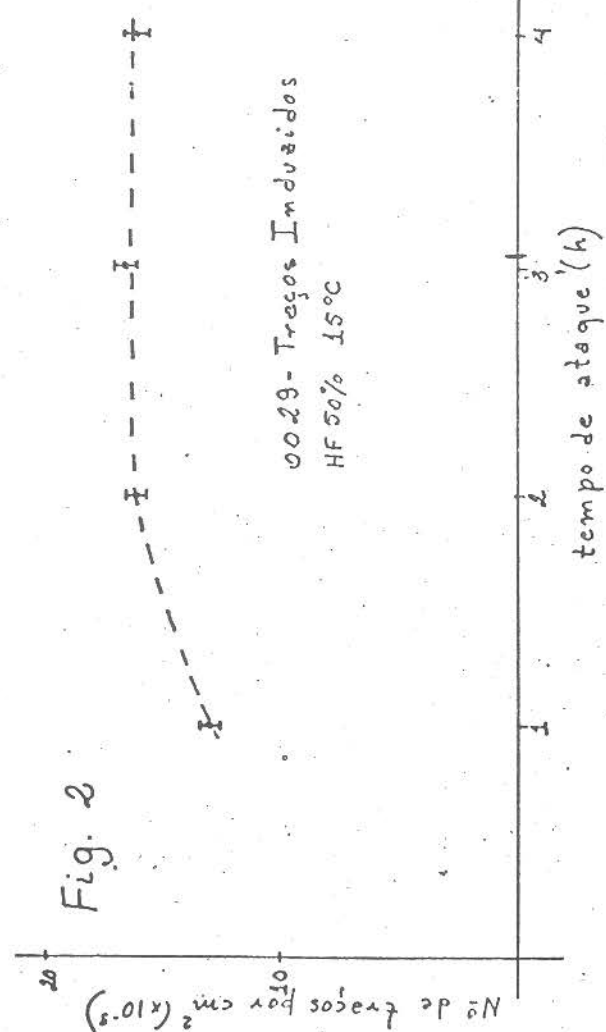
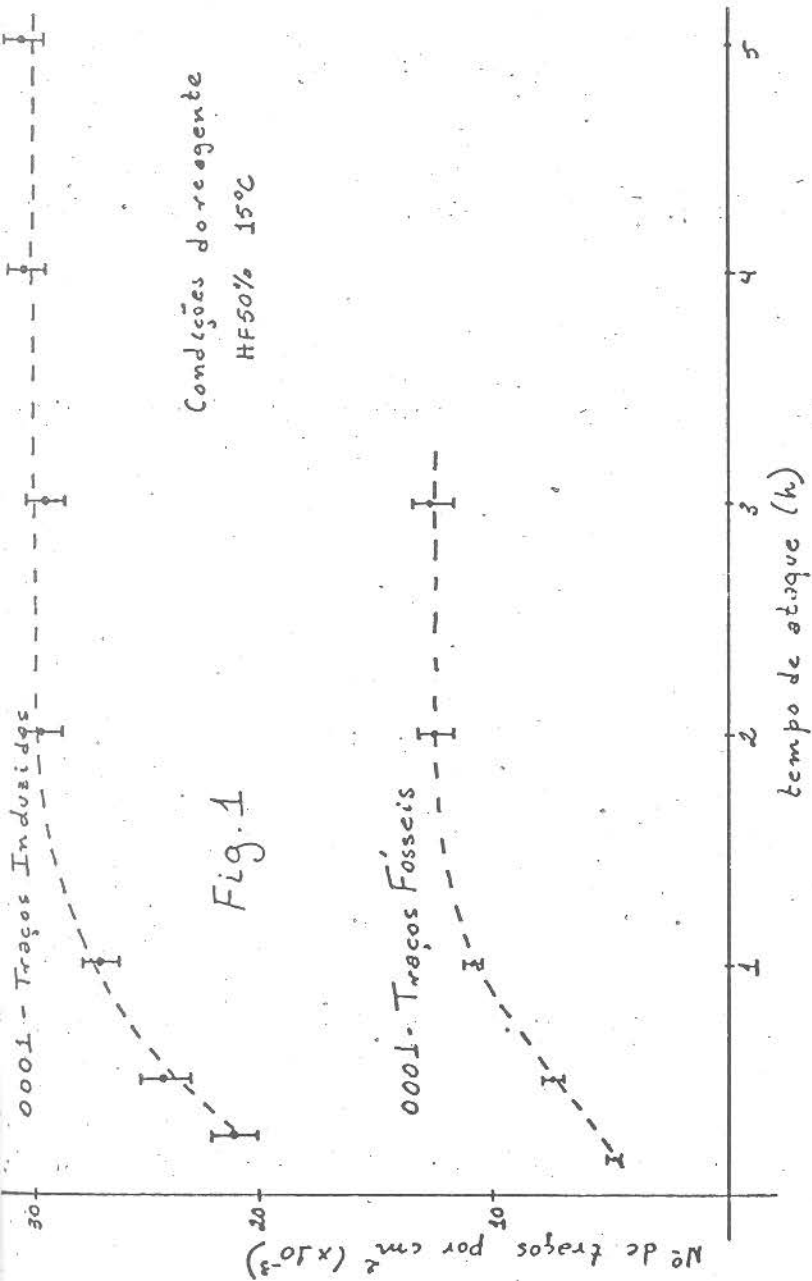
Para as distribuições azimutais observadas encontramos perda também da ordem de 30%, tanto para fósseis como para induzidos (ver tabela 4). Essa perda foi estimada considerando-se de 100% a eficiência na direção que fornece o ponto máximo da curva dada pela análise harmônica.

Tabela 4

amostra	condição de ataque	perda (%)	
		fósseis	induzidos
0001	HF40% 40°C	28,6	29,1
0038	HF40% 40°C	29,1	31,0
0155	HF40% 40°C	35,1	35,9
0001	HF50% 15°C	23,7	24,2
0036	HF50% 15°C	30,1	24,2
perda média		29,3±4,1	28,9±4,9

Essas análises não são suficientes para demonstrar se as perdas azimutal e zenital são correlacionadas ou não, porém podemos afirmar que a perda é de pelo menos 30%.

Resumindo: não há isotropia na distribuição dos traços de fissão em micas muscovitas; em consequência a eficiência não é de 100%, porém, como a anisotropia afeta igualmente os traços fósseis e os induzidos, esse resultado não é relevante para o problema da datação, dentro das estatísticas utilizadas neste trabalho.



400 -

Fig. 4

0001 - Traços Fósseis
HF 40%, 40°C, 5'

300 -

200 -

100 -

0 -

403 traços

-30

-20

-10

nº de traços por intervalo de 10°

50 100 150 200 250 300 350

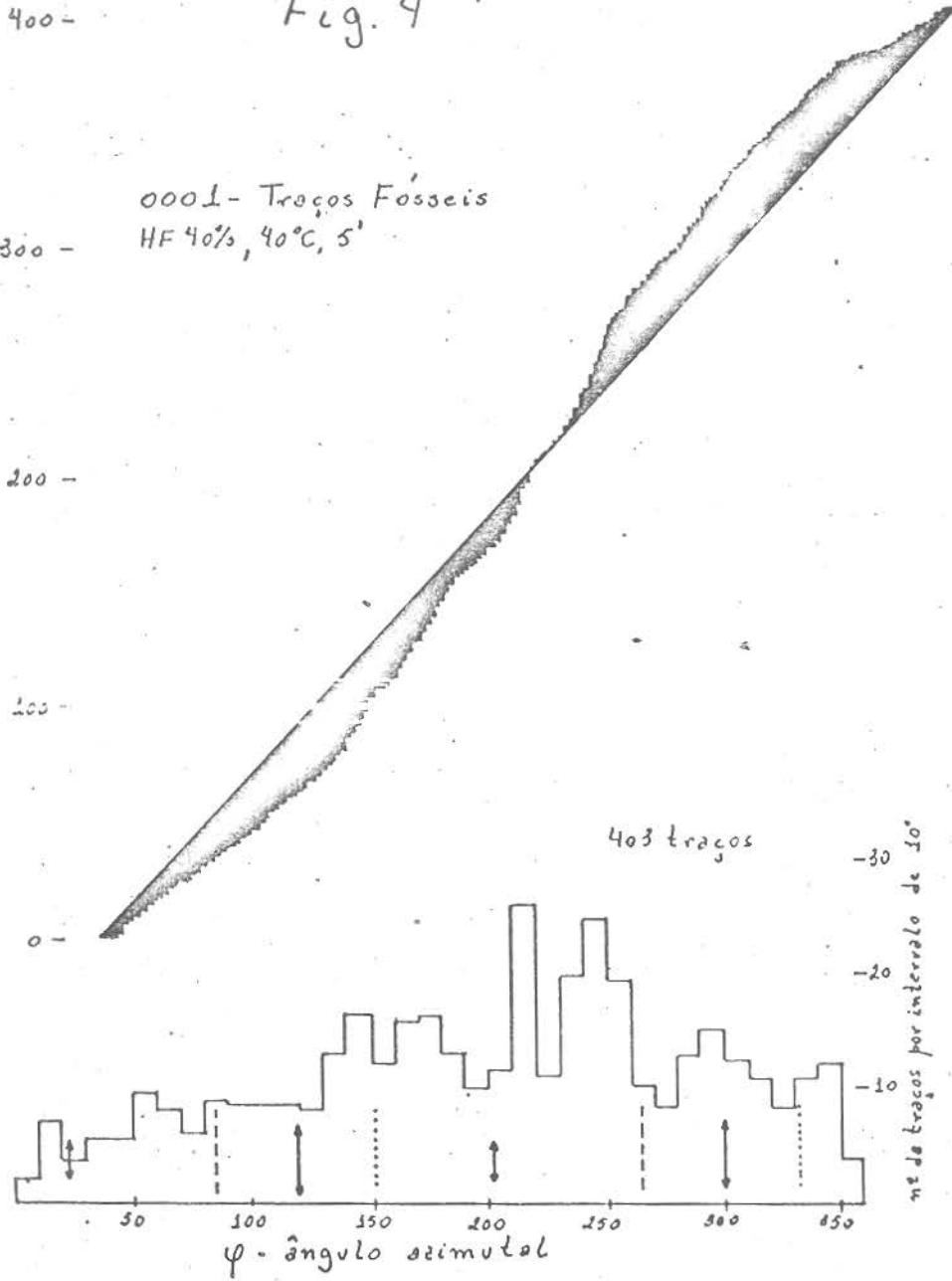
 φ - ângulo azimutal

Fig. 5

0001- Traços Fosséis
HF 40%, 40°C, 15'

600 -

400 -

200 -

0 -

nº de traços por intervalo de 10°

640 traços

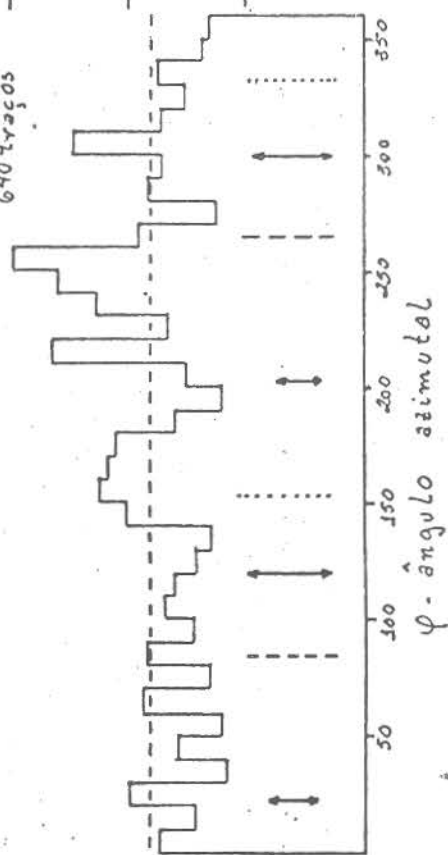


Fig. 6

0001- Traços Induzidos
HF 40%, 40°C, 30'

600 -

400 -

200 -

0 -

nº de traços por intervalo de 10°

660 traços

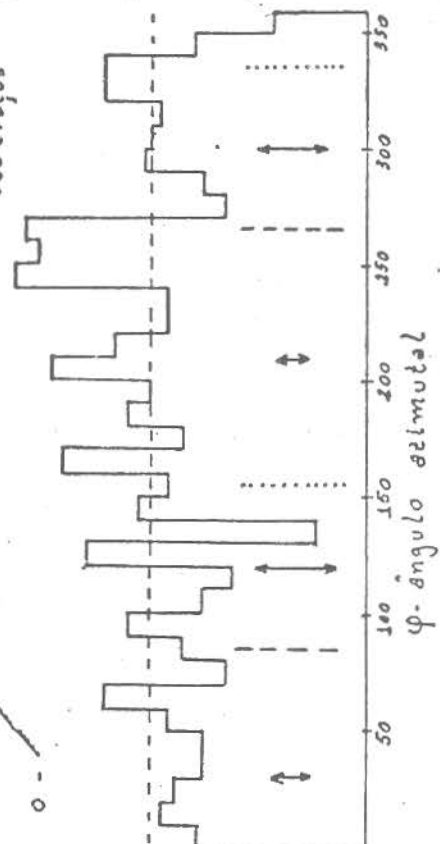


Fig. 7

600 - 0155 - Troços Fosséis

HF 40%, 40°C, 30'

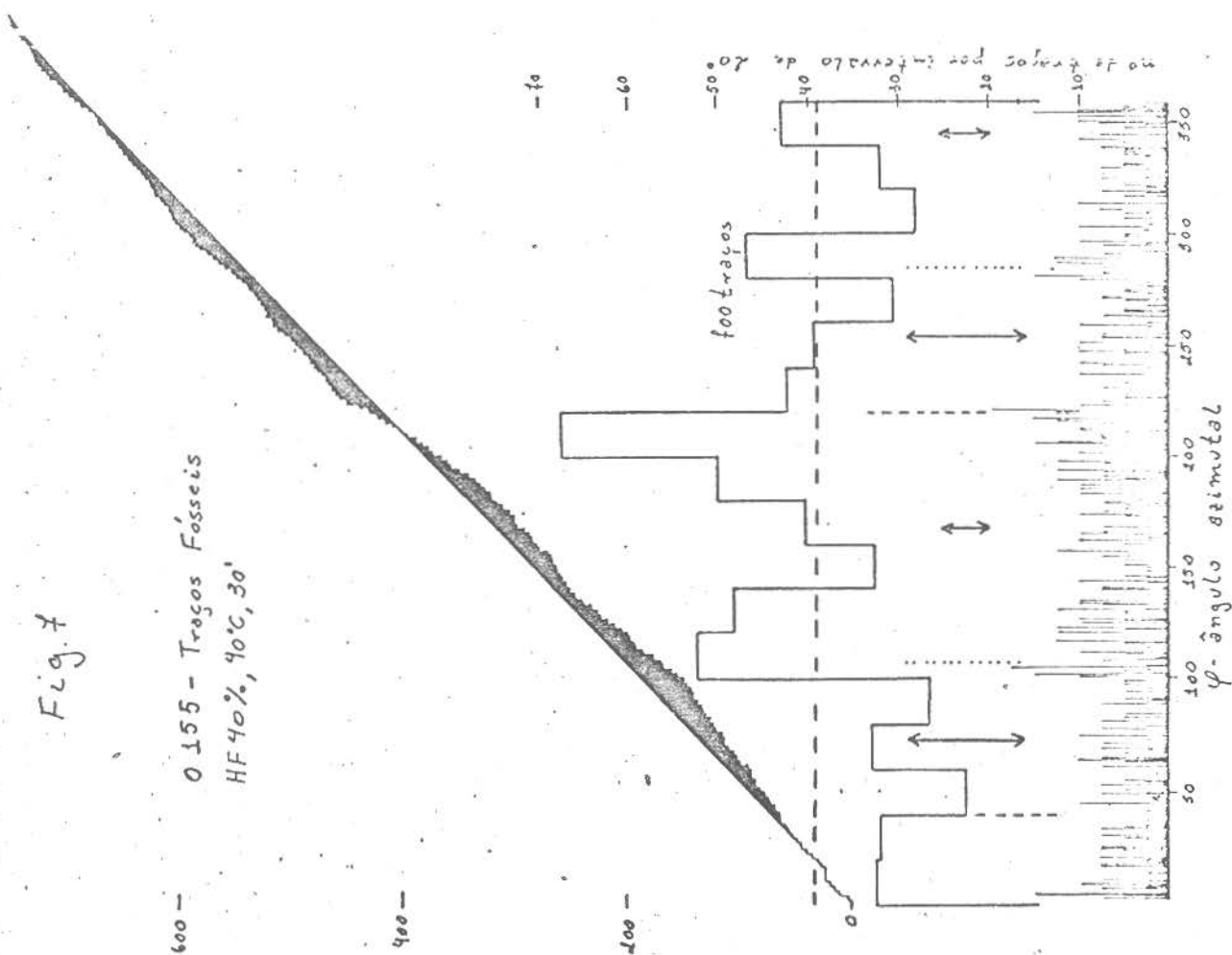


Fig. 8

0.155 - Traços Induzidos

HF 40%, 40°C, 30'

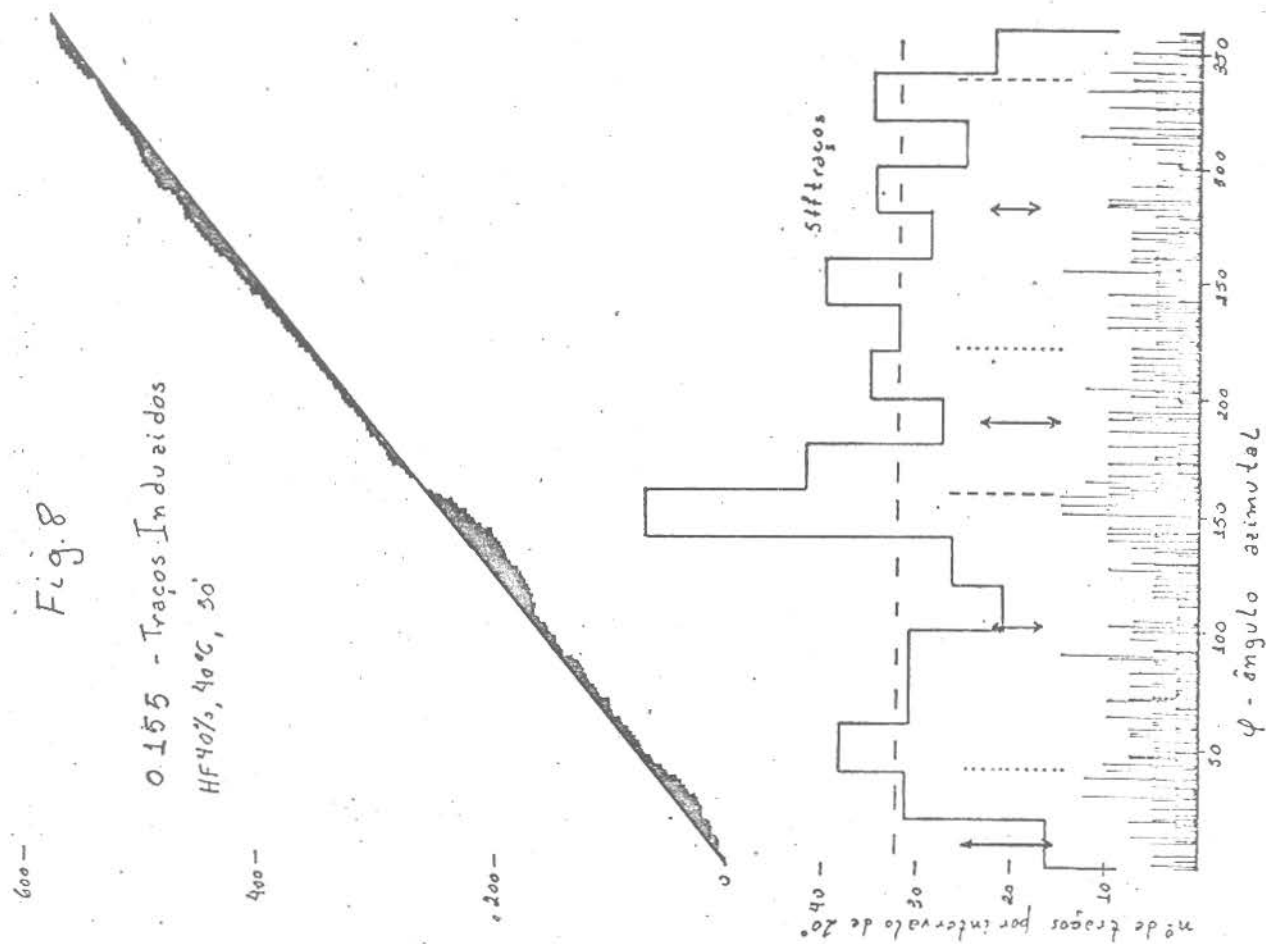
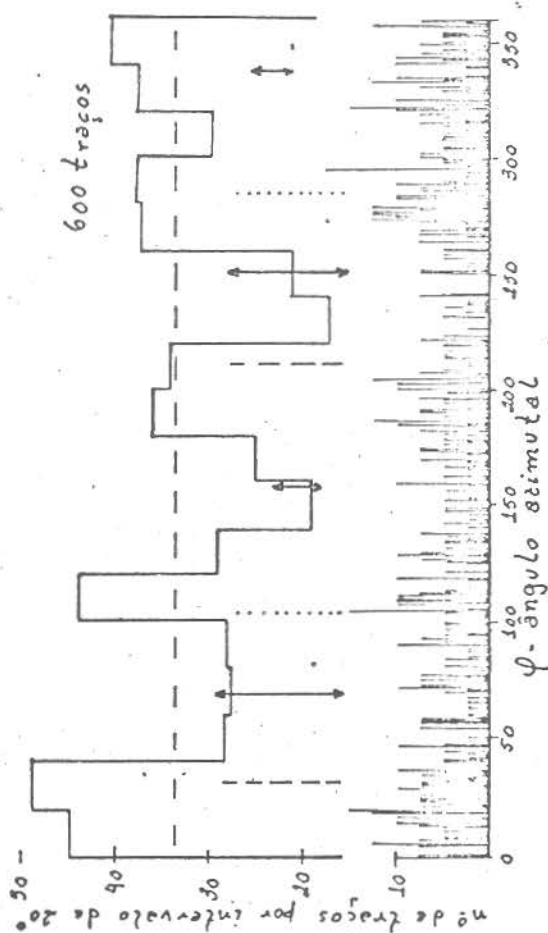
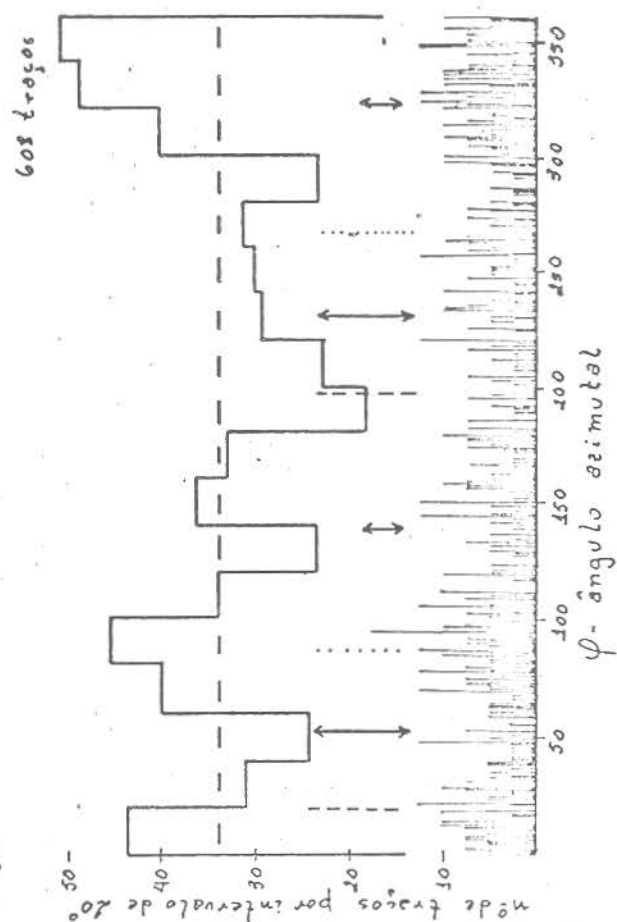
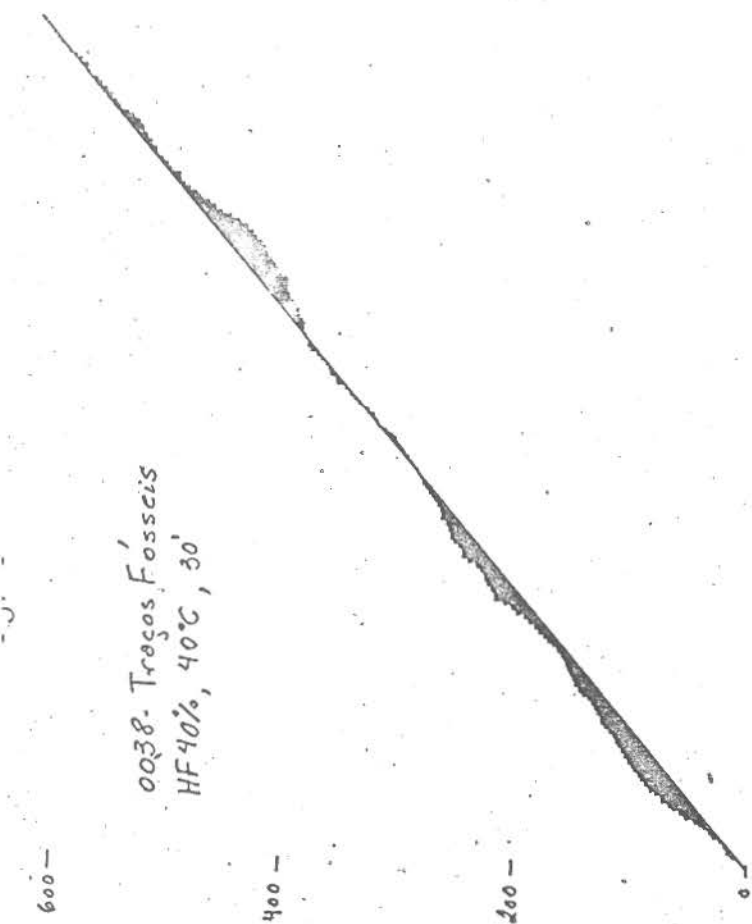
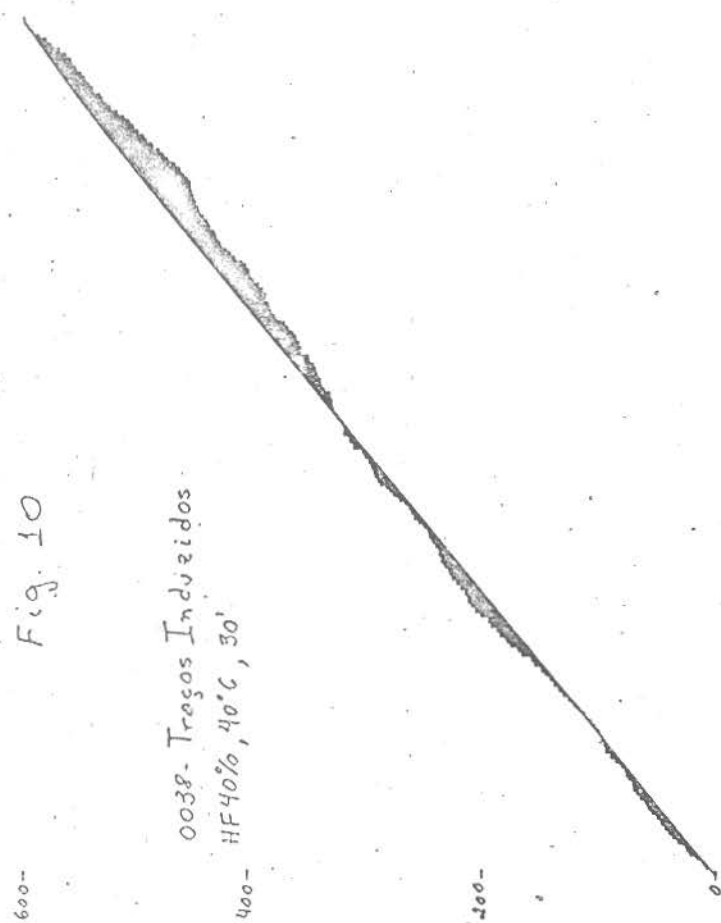
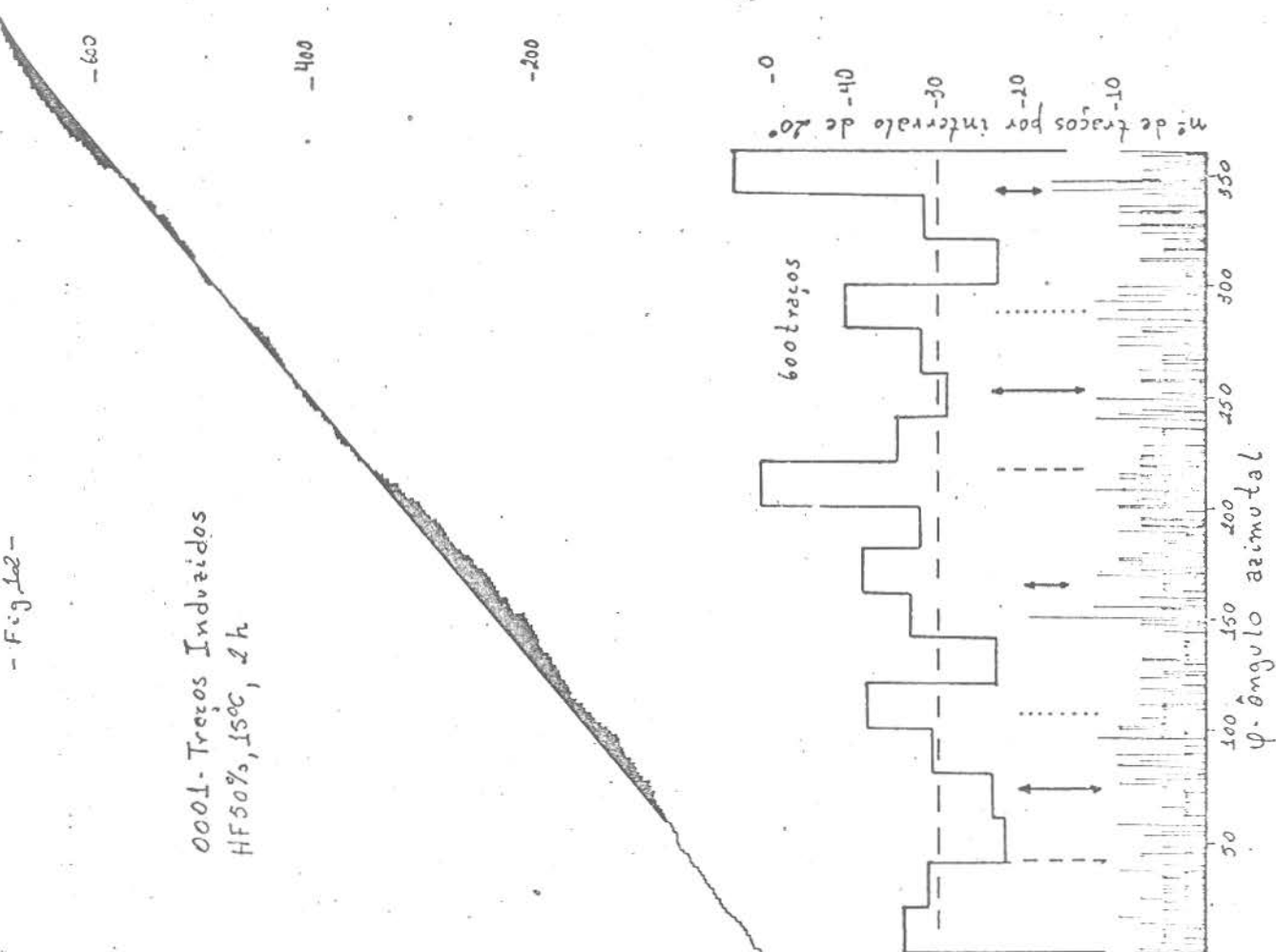


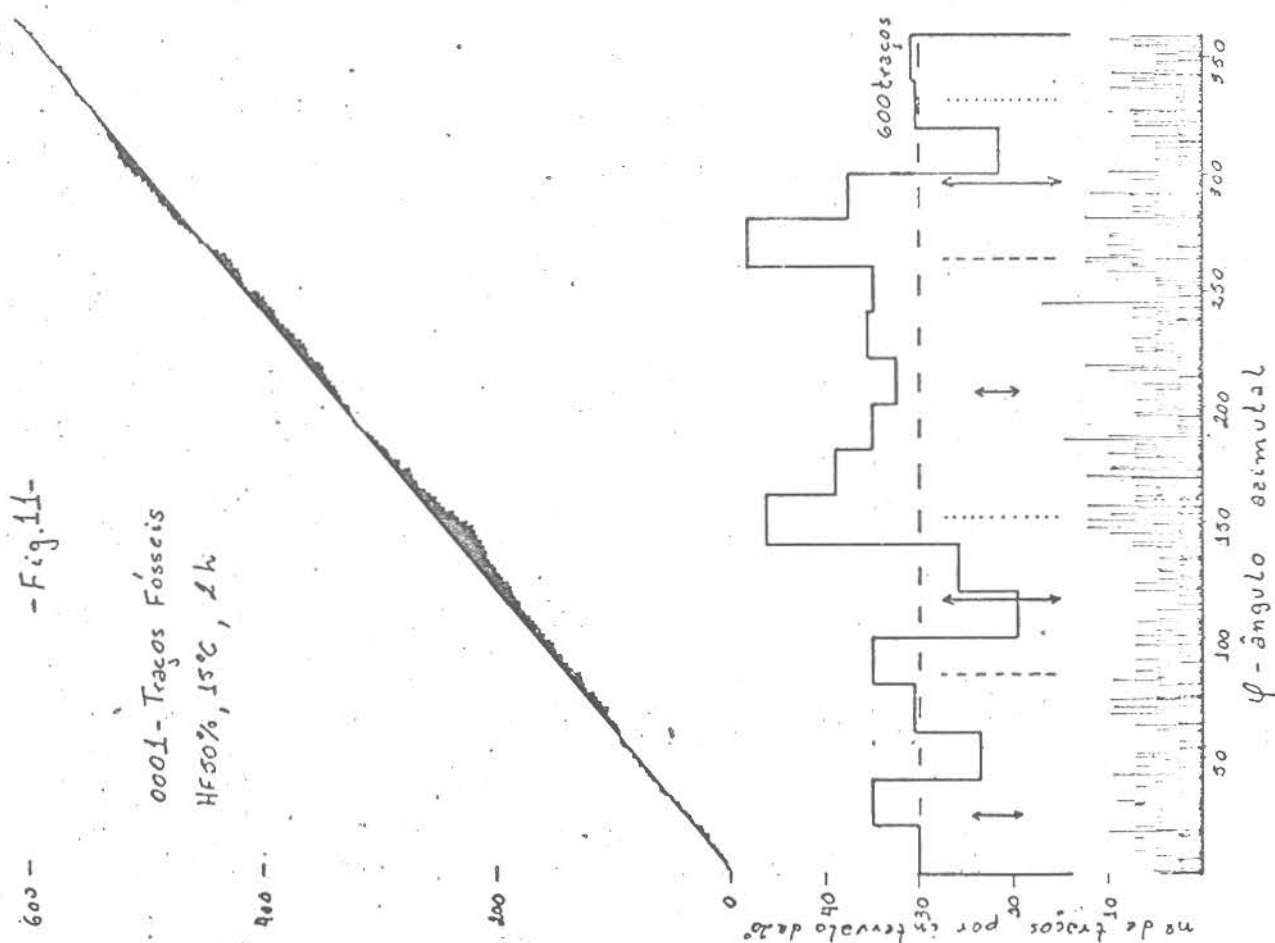
Fig. 10



- Fig. 12 -



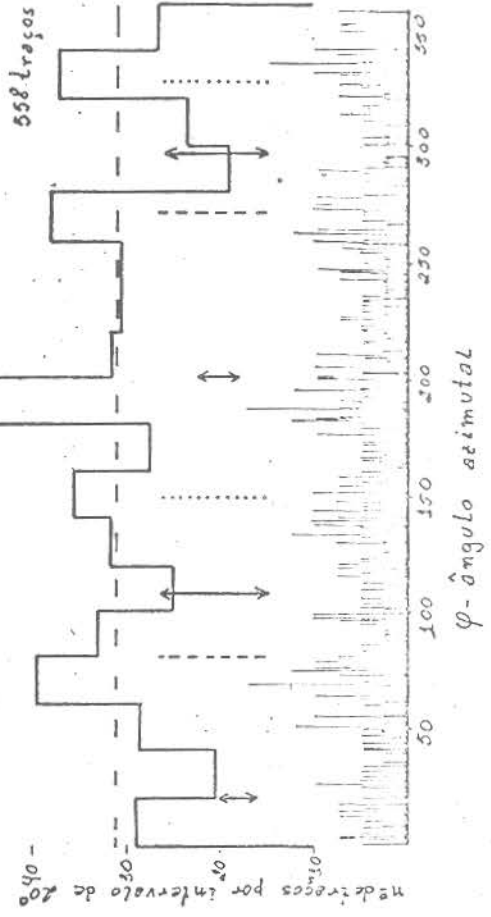
- Fig. 11 -



-Fig.14-

0036 - Traços Induzidos

HF50%, 15°C, 2h



-Fig.13-

0036 - Traços Fosséis

HF50%, 15°C, 2h

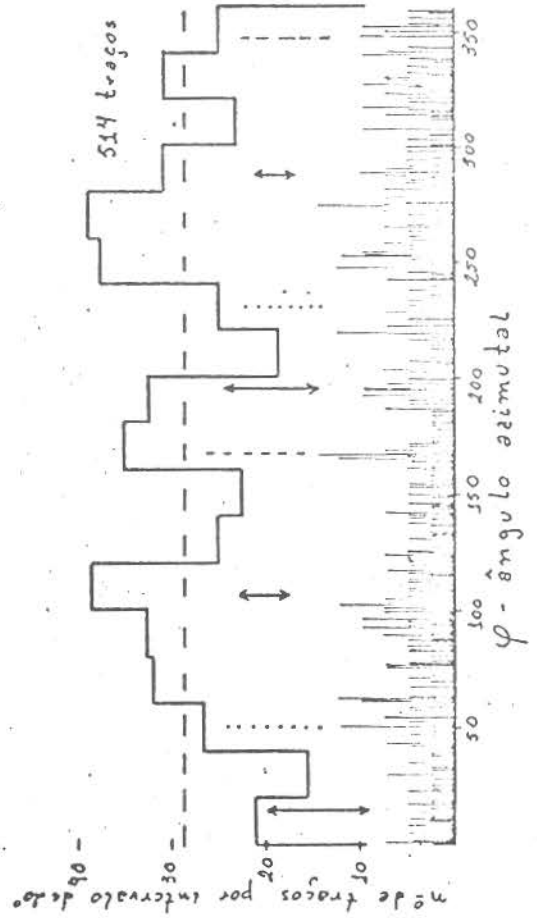


Fig. 15

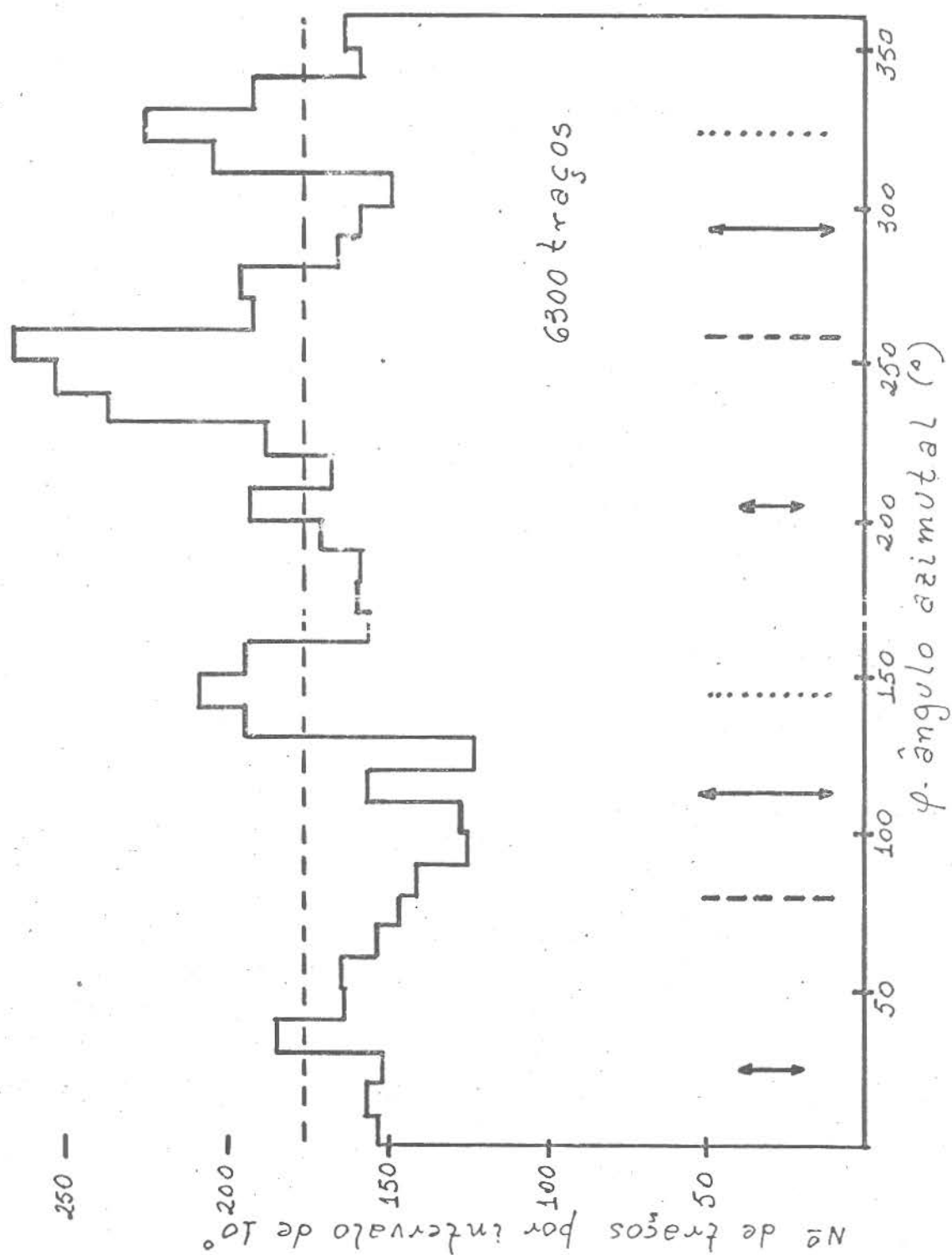
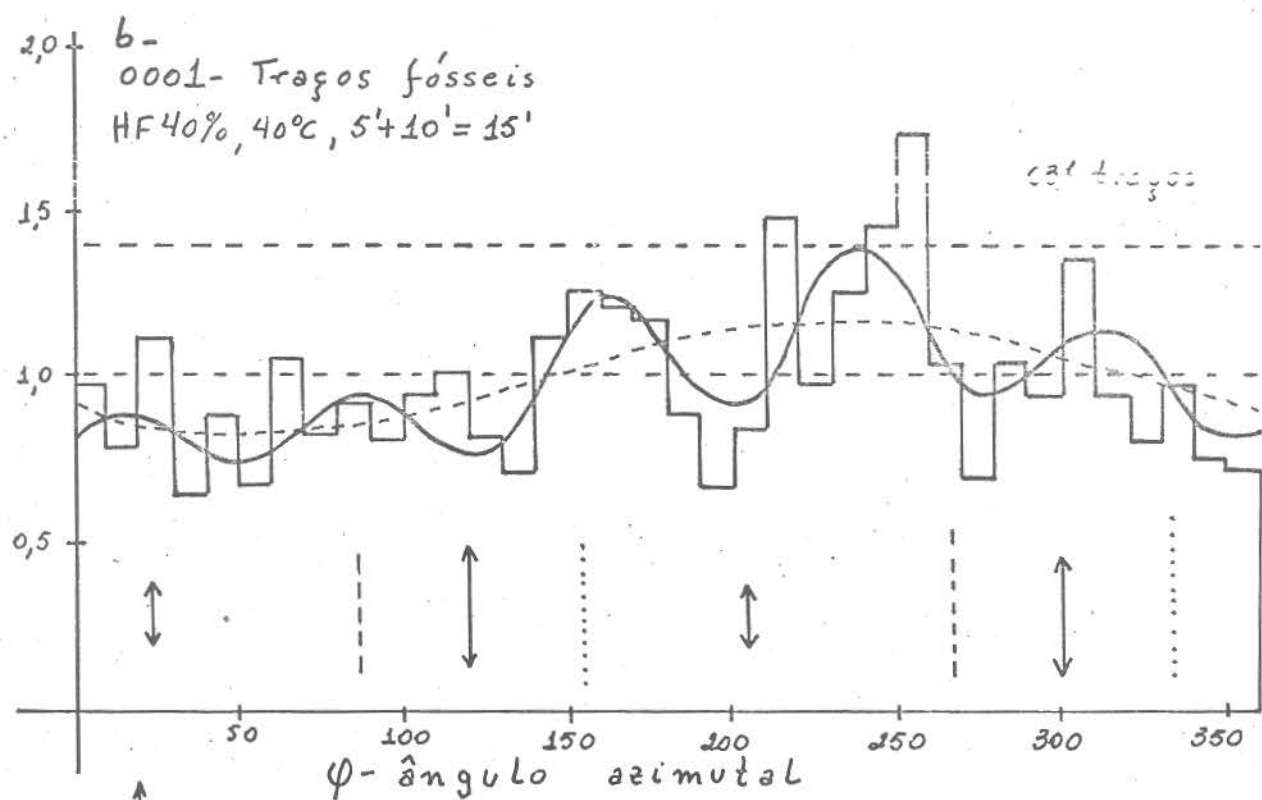
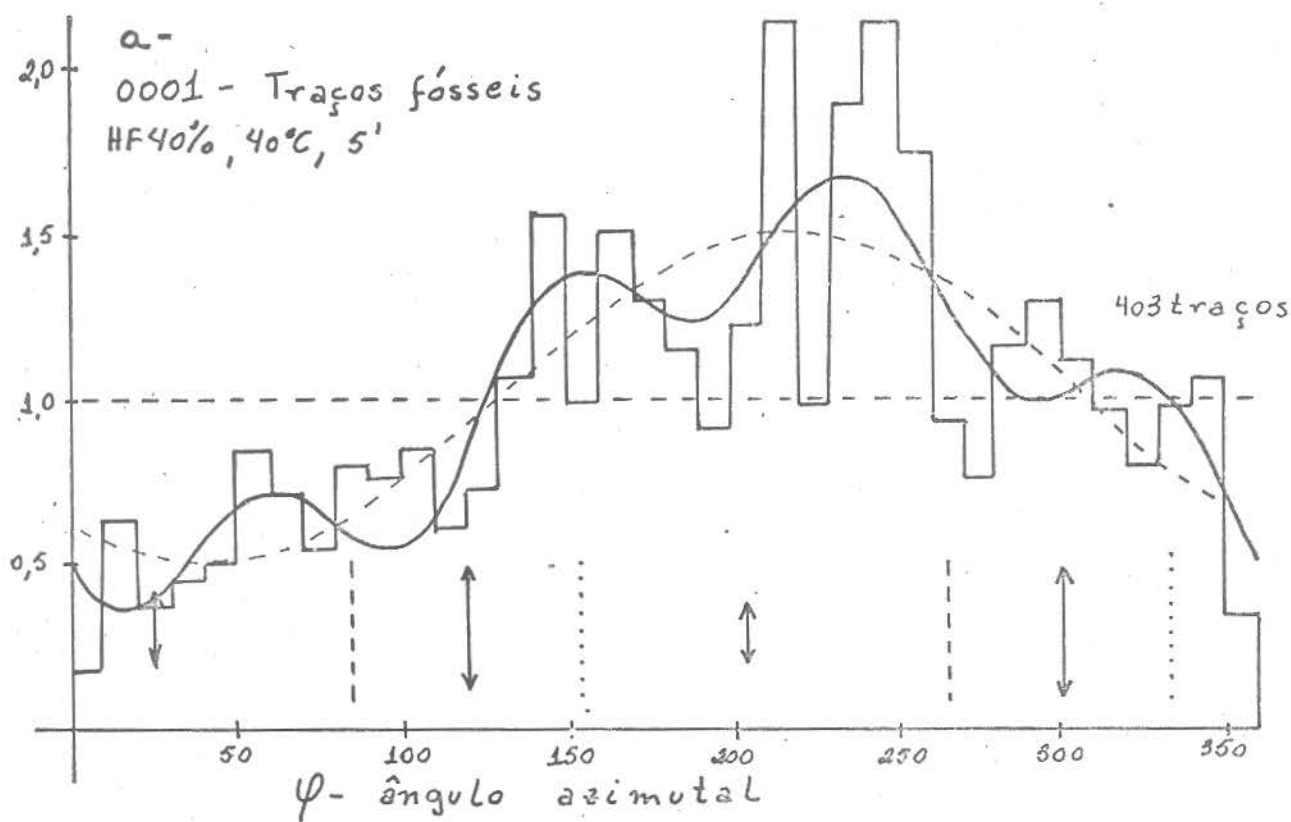


Fig. 16 - histograma normalizado



Diagonais (menor e maior) da seção horizontal do traço

Lados da seção horizontal do traço

Fig. 17

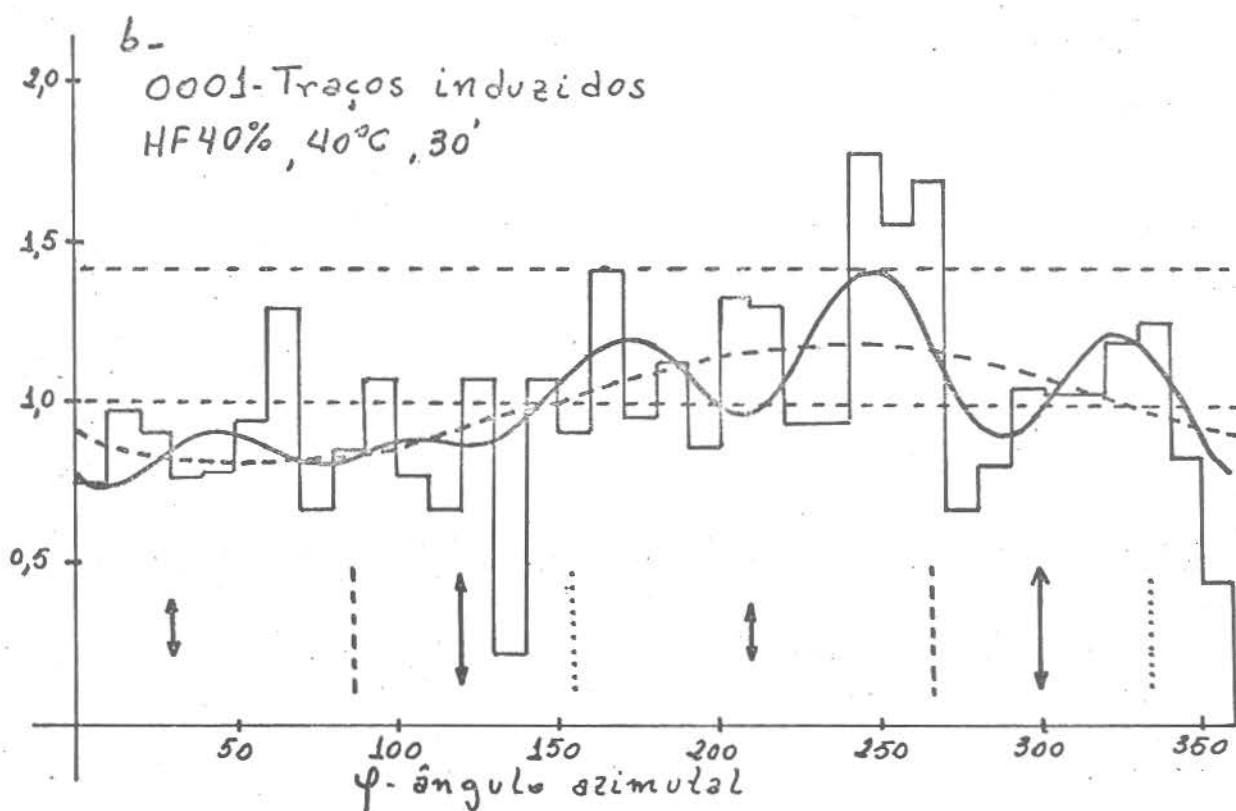
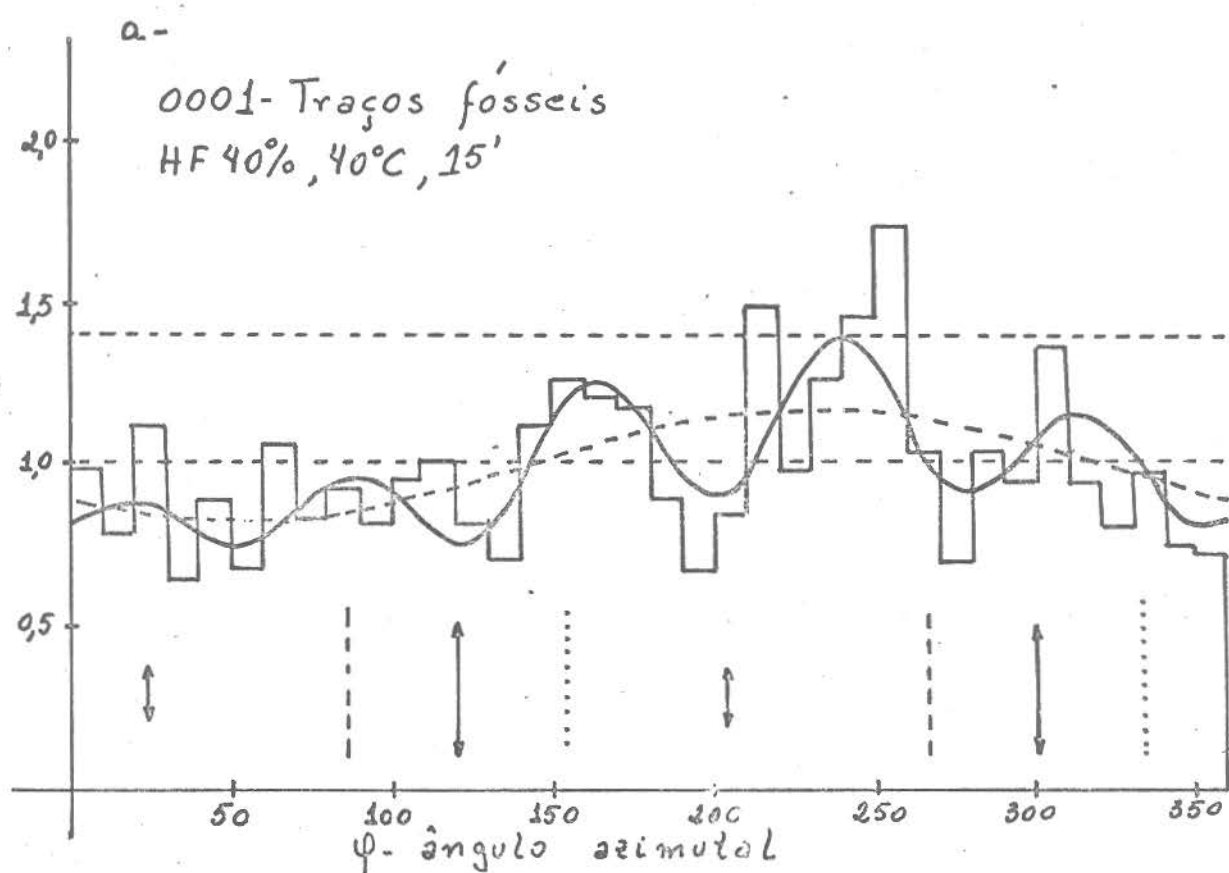
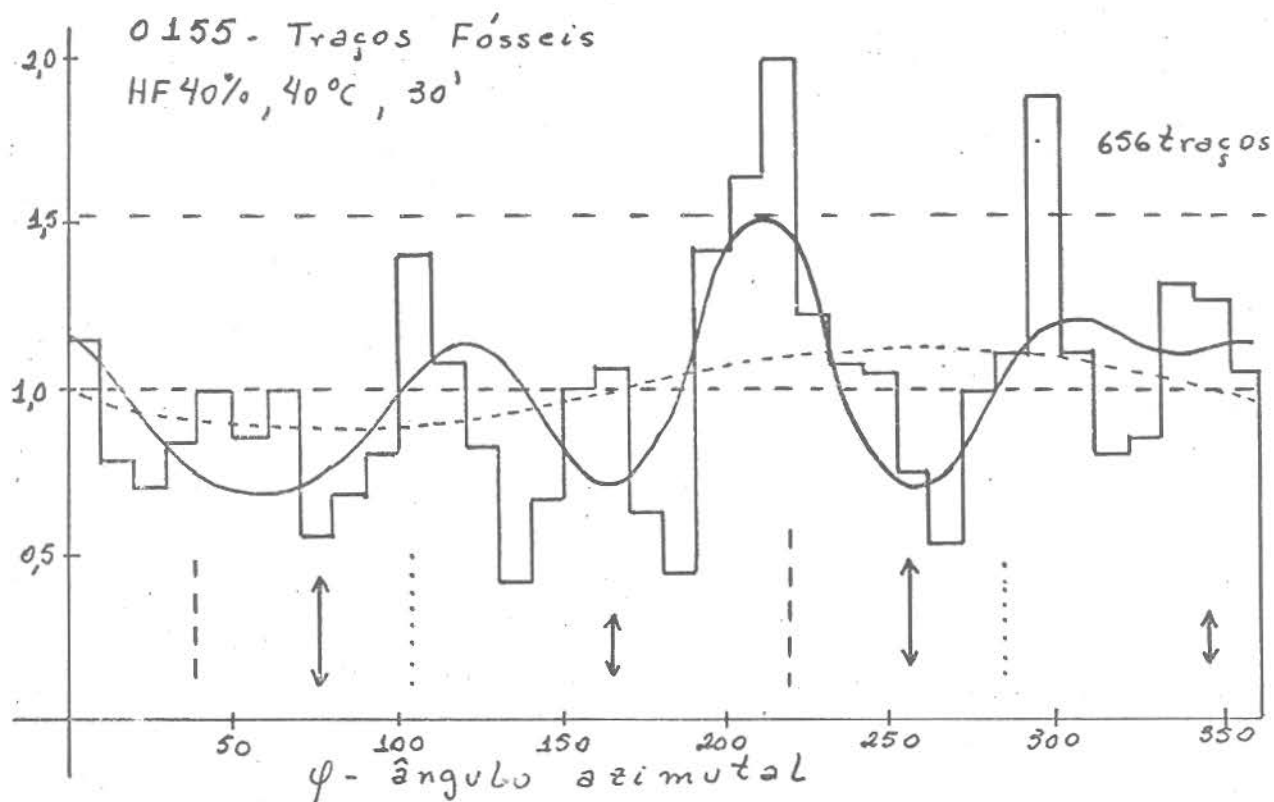
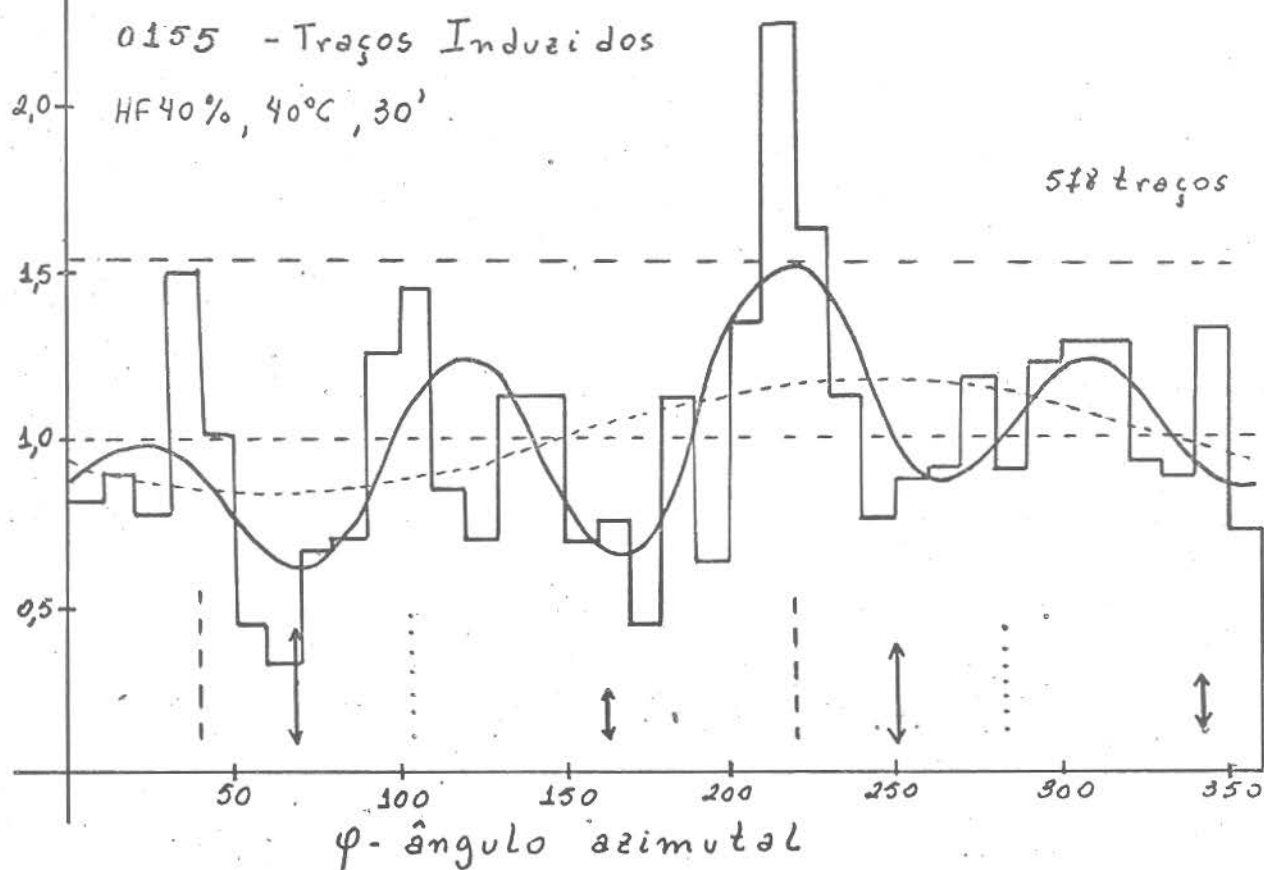


Fig. 18 - histograma normalizado

a-



b-



- Fig.19 histograma normalizado

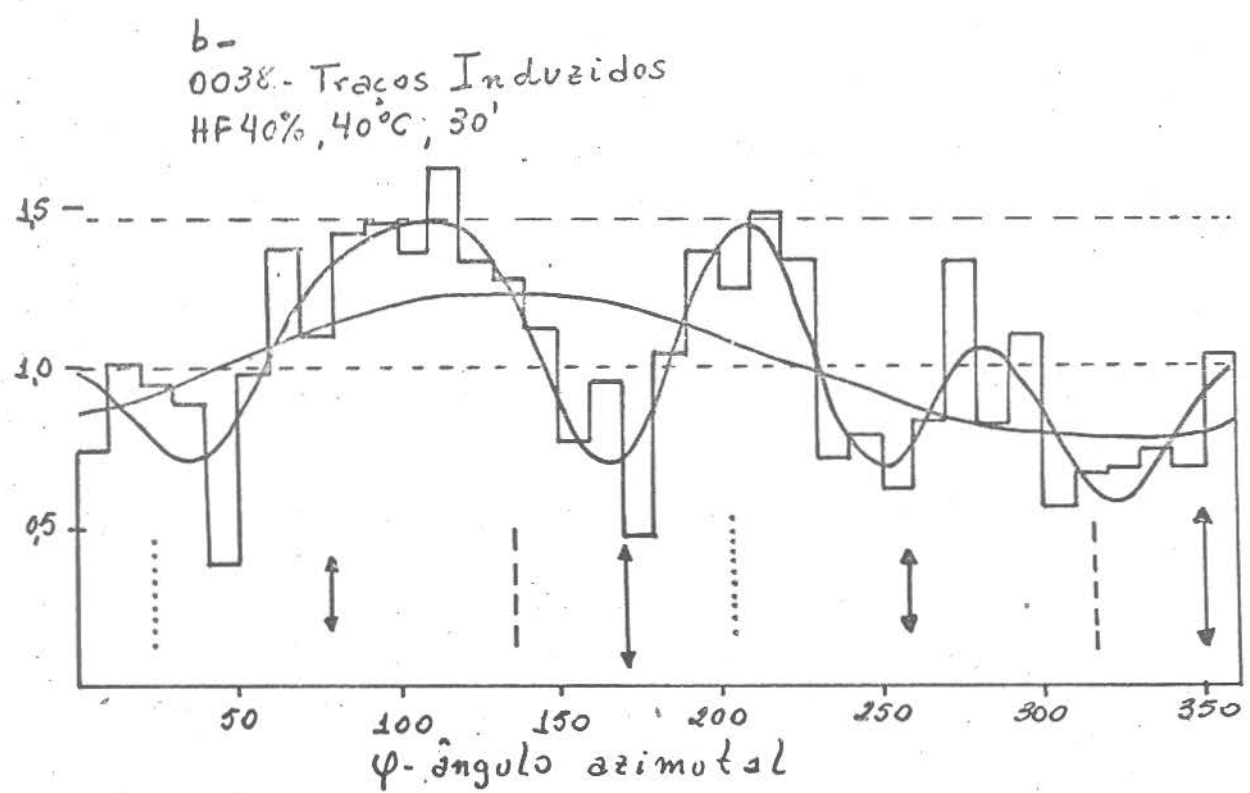
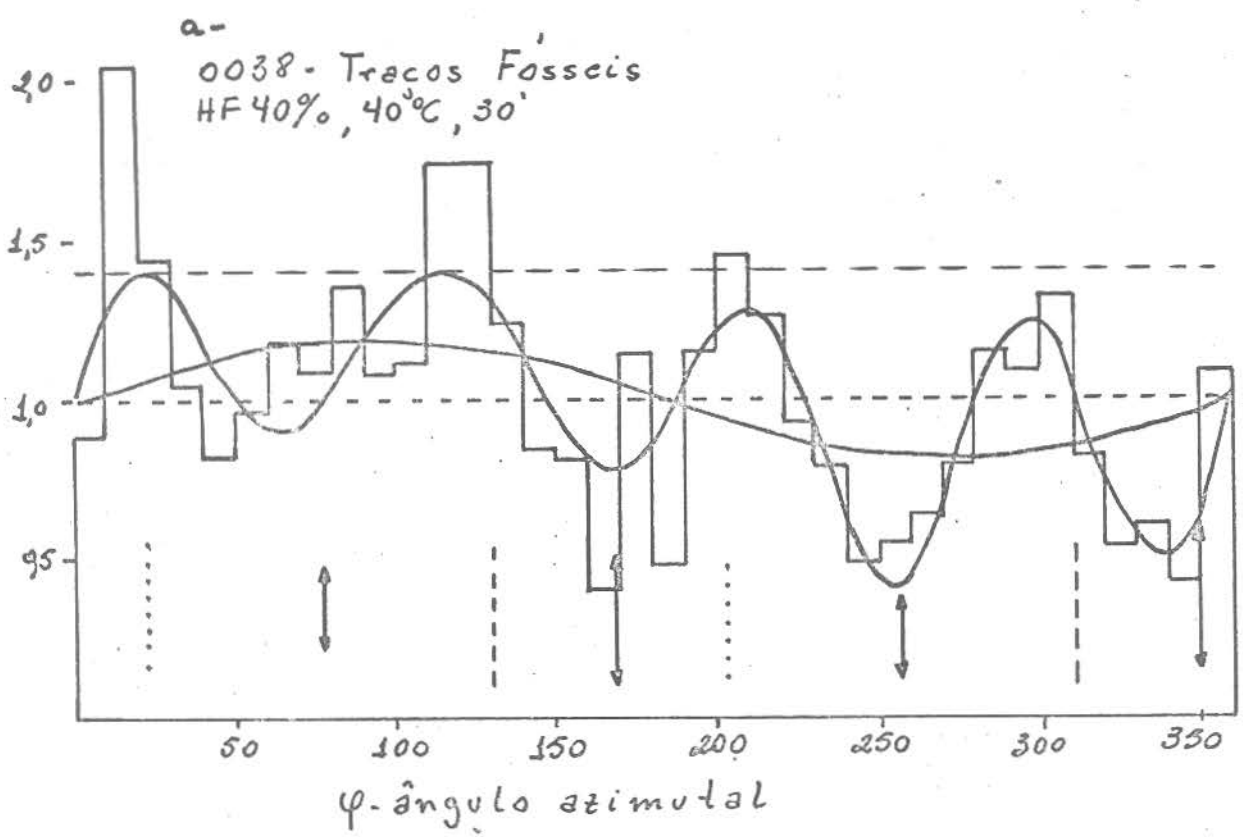


Fig. 20 - histograma normalizado 34

a- 0001- Traços Fósseis
HF50%, 15°C, 2h

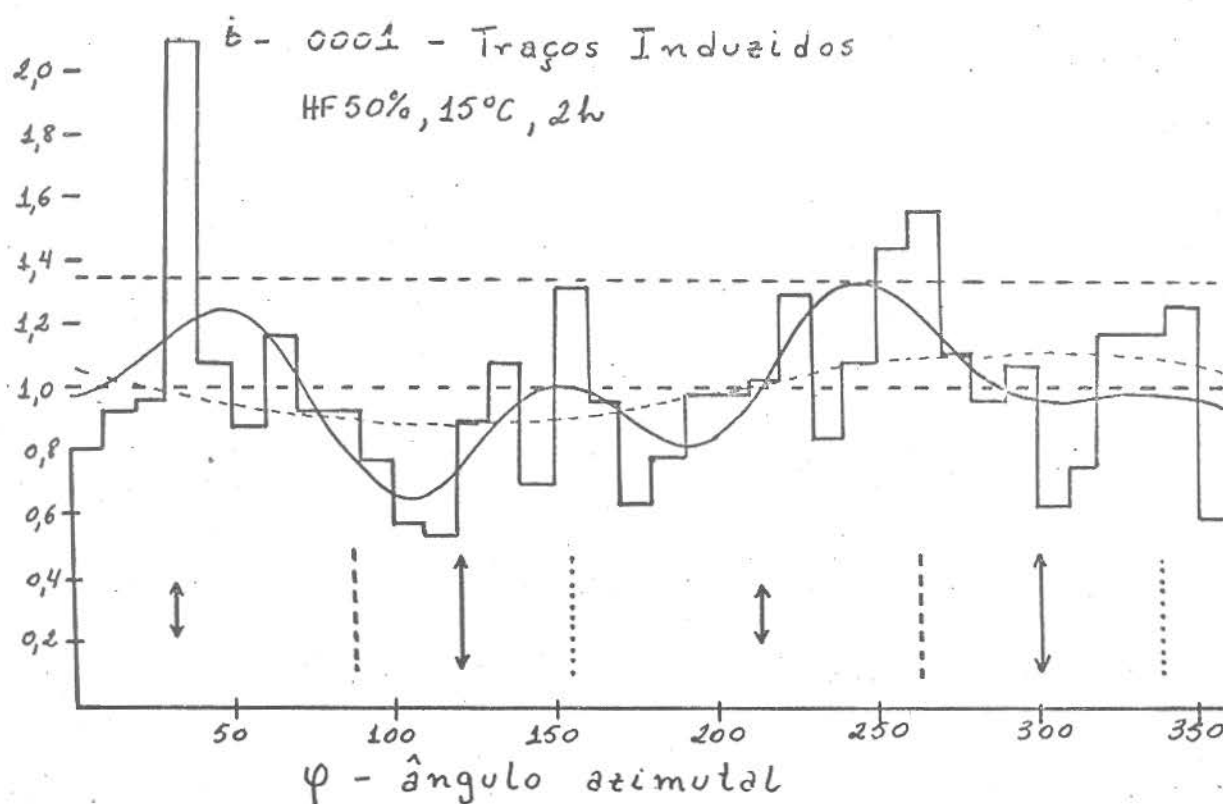
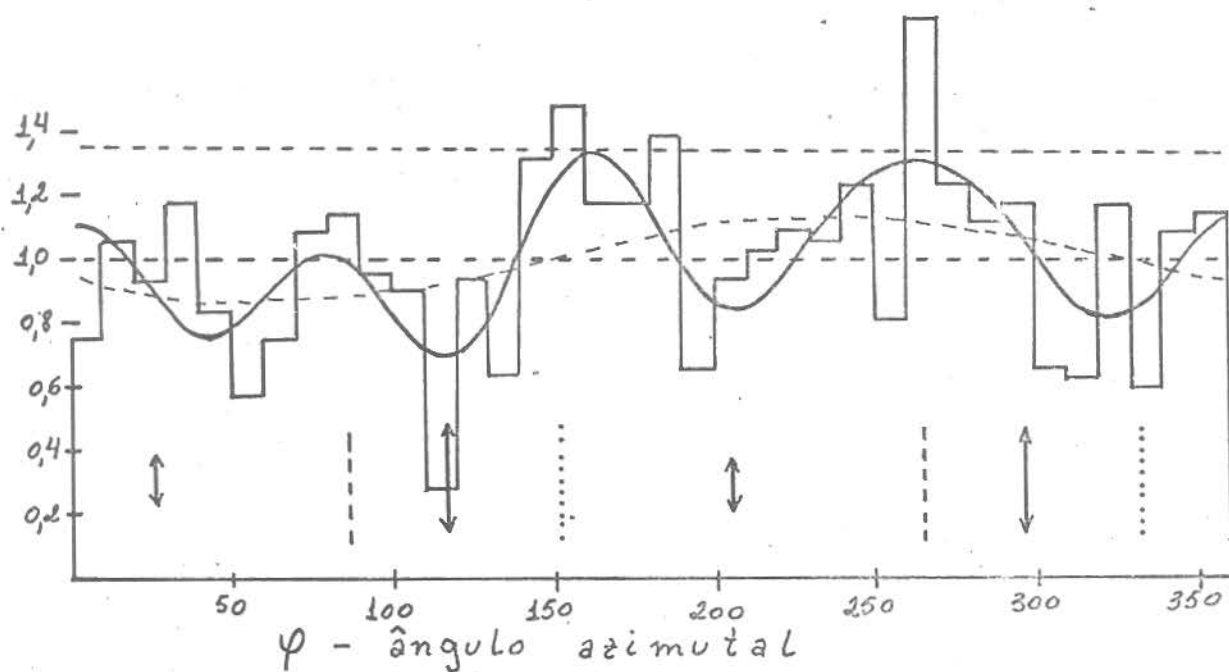


Fig. 21

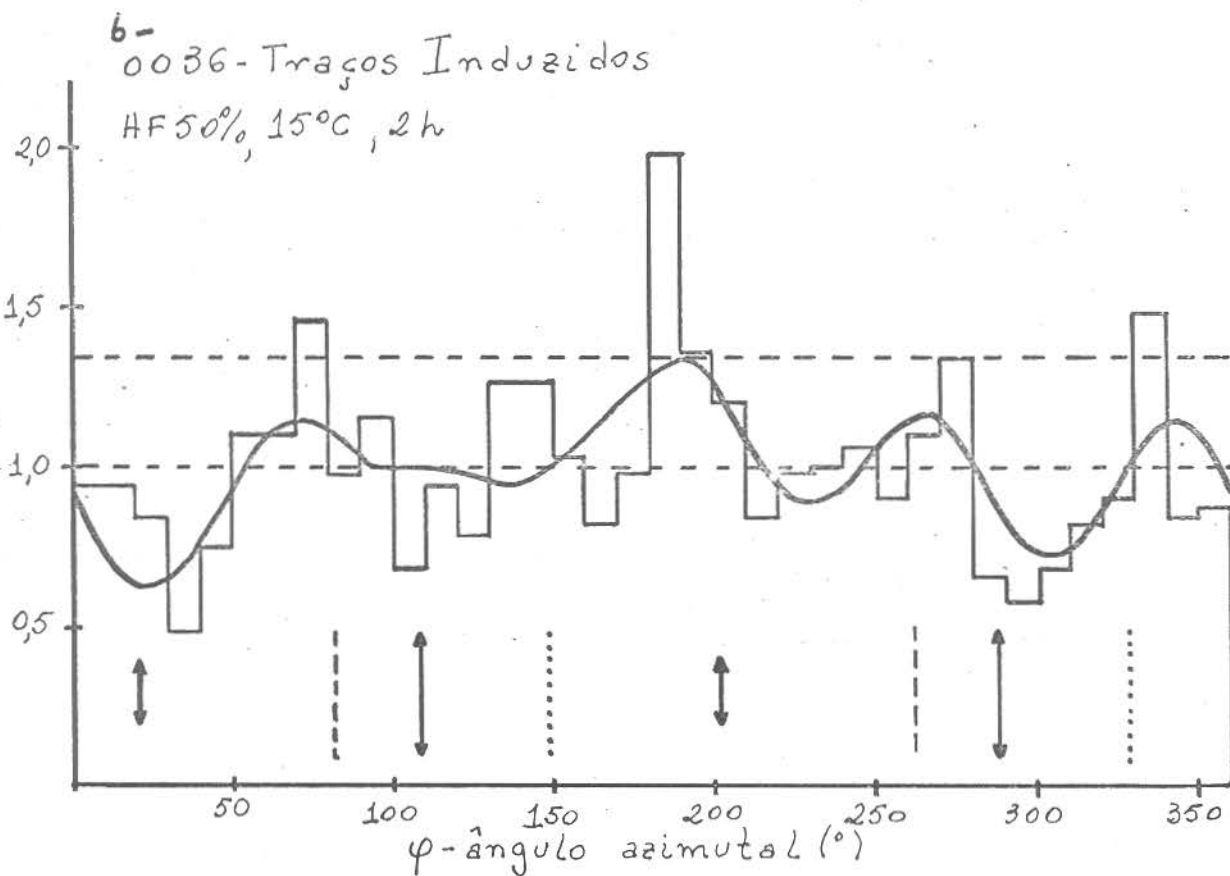
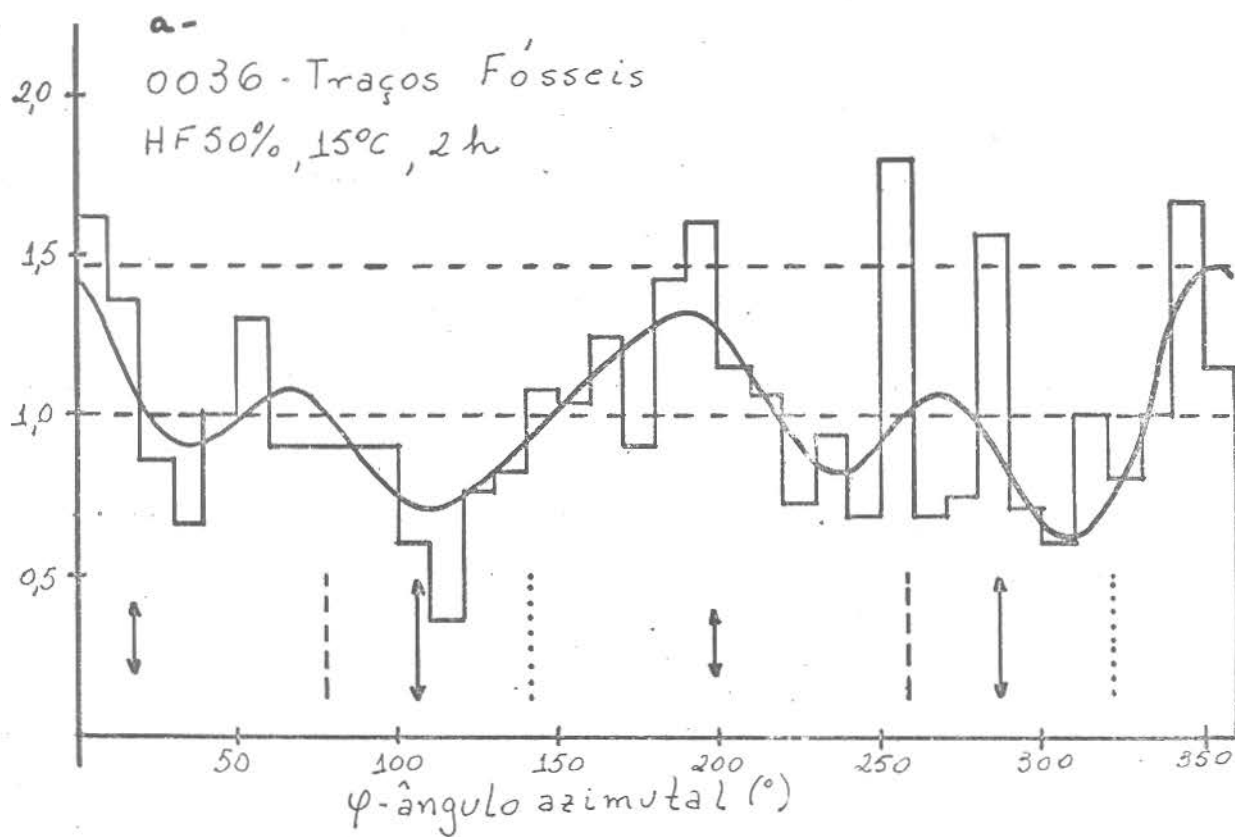
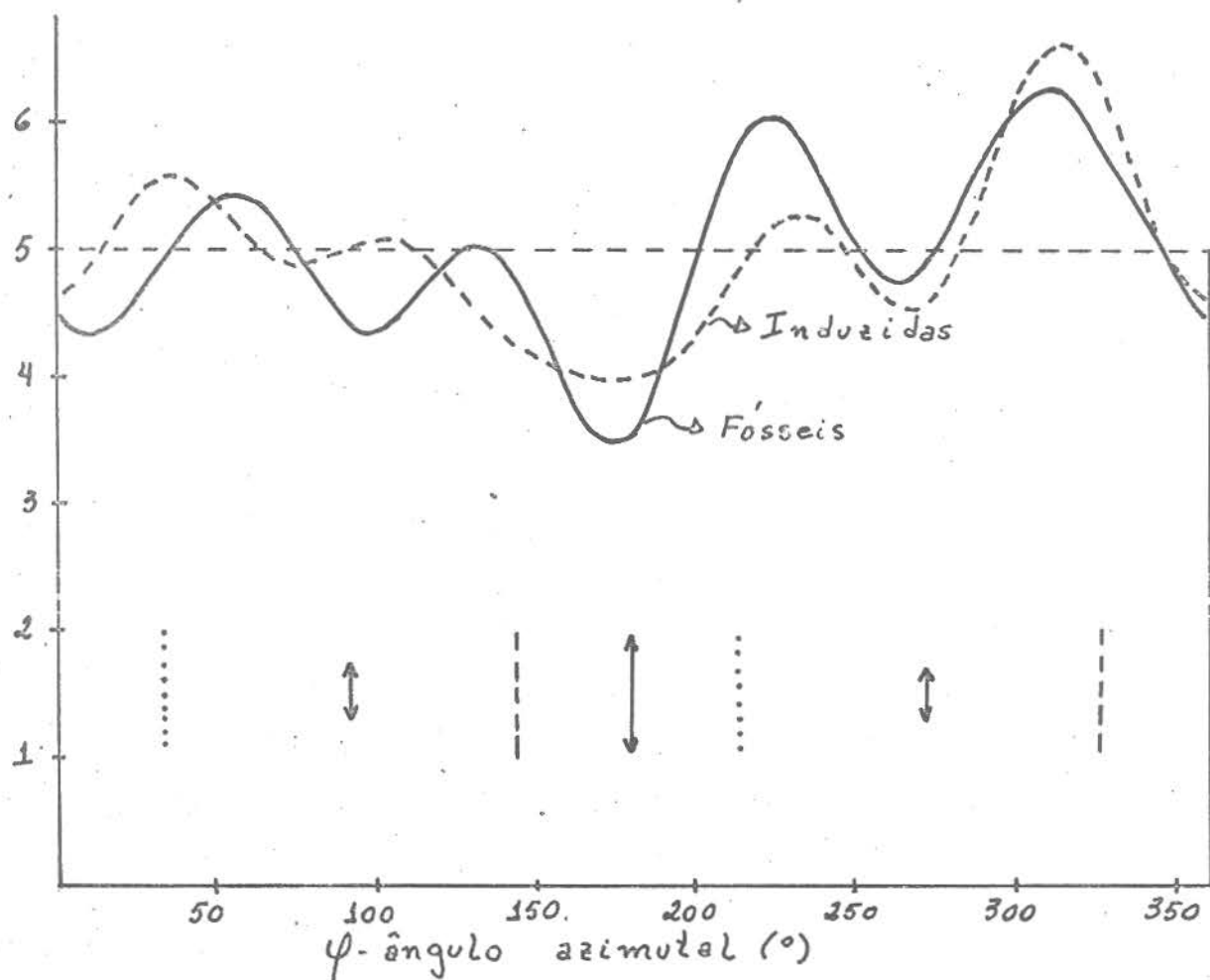


Fig. 12

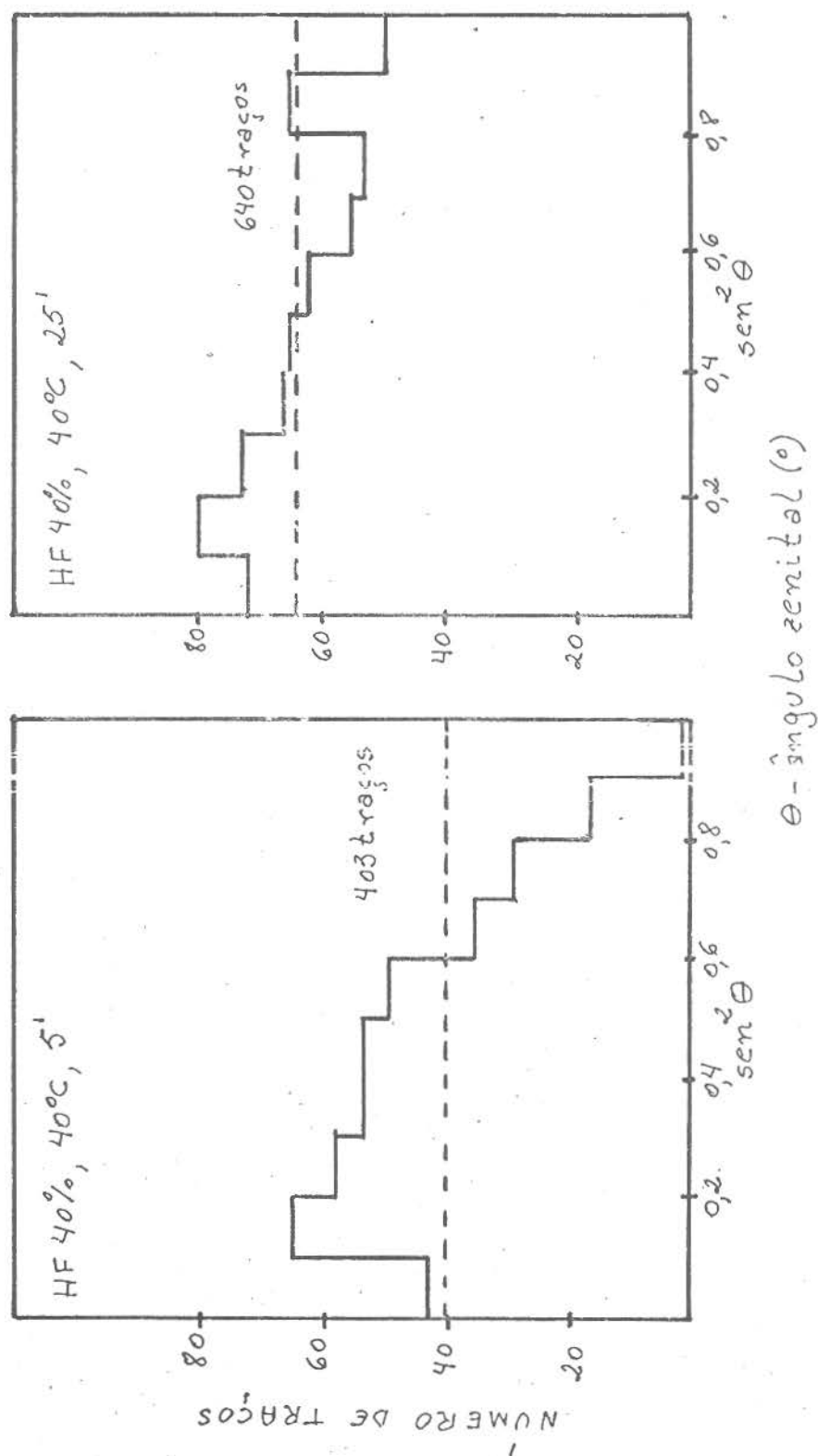
Soma das harmônicas significativas* para
as 5 amostras analisadas



* de coeficiente maior que o erro(0,06)

Fig. 23

0001- Traços Fósseis



APÊNDICE 1

O método de datação por traços de fissão.

A lei de decaimento do U^{238} , por α e por fissão, nos diz que:

$$n_a^{238}(t) = n_a^{238}(t_0) e^{-\lambda(t - t_0)} \quad (1)$$

onde:

t_0 = instante de formação do mineral

t = instante considerado

n_a^{238} = número de átomos de U^{238} por unidade de volume

λ = constante de decaimento total do U^{238} ($\lambda_f + \lambda_\alpha$)

Analisando o canal de decaimento do U^{238} por fissão espontânea, podemos dizer que o número de átomos de U^{238} por unidade de volume que se fissionou no intervalo de tempo entre t e $t + dt$ é:

$$d n_f^{238}(t) = -\lambda_f n_a^{238}(t) dt$$

onde λ_f é a constante de decaimento por fissão espontânea do U^{238} . Portanto, o número de átomos de U^{238} fissionados por unidade de volume no tempo t é:

$$n_f^{238}(t) = - \int_{t_0}^t \lambda_f n_a^{238}(t) dt, \text{ pois } n_f^{238}(t_0) = 0$$

Temos então:

$$n_f^{238}(t) = \frac{\lambda_f}{\lambda} n_a^{238}(t_0) [1 - e^{-\lambda(t - t_0)}] \quad (2)$$

Utilizando (1) e (2) teremos:

$$t - t_0 = \frac{1}{\lambda} \ln \left[1 + \frac{\lambda}{\lambda_f} \frac{n_f^{238}(t)}{n_a^{238}(t)} \right] \quad (3)$$

Fissão Induzida

Para determinarmos o número de átomos de U^{238} no instante t , $n_a^{238}(t)$, utilizaremos:

- seja $\eta = \frac{n_a^{238}(t)}{n_a^{235}(t)} = 137,1$ a relação isotrópica desses

dois isótopos de Urânio

- seja ϕ o fluxo de neutrons térmicos ao qual se submete a amostra no instante t .

Temos então que:

$$n_f^{235}(t) = n_a^{235}(t) \phi \sigma$$

onde σ é a seção de choque para a fissão induzida do U^{235} por neutrons térmicos.

Com isso podemos chegar a :

$$n_a^{238}(t) = \frac{\eta}{\phi \sigma} n_f^{235}(t) \quad (4)$$

De (3) e (4) podemos tirar a fórmula da idade. $I = t - t_0$ do mineral, tal seja:

$$I = \frac{1}{\lambda} \ln \left| 1 + \frac{\lambda \phi \sigma}{\lambda_f \eta} \frac{n_f^{238}(t)}{n_f^{235}(t)} \right| \quad (5)$$

A grandeza $\frac{\lambda \phi \sigma}{\lambda_f \eta} \frac{n_f^{238}(t)}{n_f^{235}(t)}$ é pequena para

idades menores que 10^9 anos e então podemos escrever:

$$I \approx \frac{\phi \sigma}{\lambda_f \eta} \frac{n_f^{238}}{n_f^{235}} \quad (6)$$

onde:

n_f^{238} = número de fissões de U^{238} por unidade de volume

n_f^{235} = número de fissões de U^{235} por unidade de volume

η = relação isotrópica U^{238}/U^{235}

λ_f = constante de decaimento do U^{238} por fissão espontânea

λ = constante de decaimento total do U^{238}

ϕ = fluxo de neutrons térmicos

σ = seção de choque do U^{235} para fissão por neutrons térmicos.

Este é o princípio do método usualmente empregado em datações. Os parâmetros σ e η são bem conhecidos; a medida do fluxo de neutrons térmicos, ϕ , deve ser feita em cada caso e vem usualmente afetada por incertezas não inferiores a 10%. A constante de

desintegração para fissão espontânea do U^{238} foi medida usando uma variante desse método e reajustada por comparação das idades de micas e vidros naturais com outros métodos (Ref. 14) sendo o valor correntemente empregado:

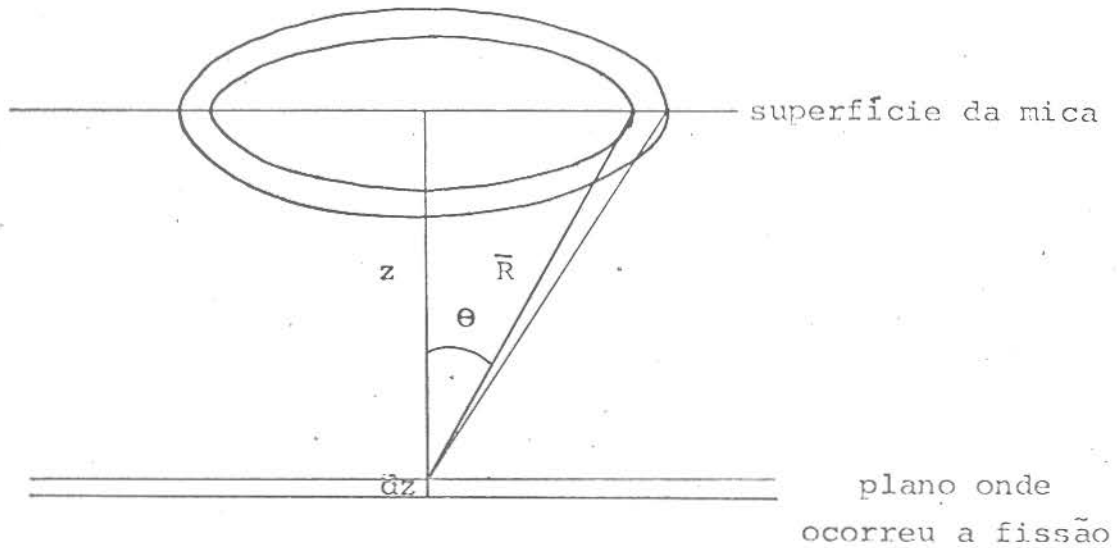
$$\lambda_f = (6.85 \pm 0.20) \times 10^{-17} \text{ ano}^{-1}$$

Incertezas de ordem de 10%, fora do erro experimental do valor medido de λ_f (sem reajuste) envolvem também esse parâmetro, podendo presumivelmente ser responsáveis pelas discrepâncias nas datações com micas acima de 10^8 anos.

A razão n_f^{238} / n_f^{235} entre fissões fósseis e induzidas é medida em cada experiência de datação. As limitações à eficiência de detecção da mica, afetando igualmente as fissões fósseis e induzidas não concorrem com erros sistemáticos para os resultados das datações.

APÊNDICE 2

Vejamos como depende o número de traços por unidade de superfície da geometria dos mesmos.



Seja R o alcance médio de um dos fragmentos da fissão. Para um determinado valor do ângulo zenital θ , a máxima distância da superfície onde pode ocorrer uma fissão que possa ser revelada é:

$$z_{\max} = \bar{R} \cos \theta \quad (7)$$

Definamos N como o número de fissões por unidade de volume. Então $\frac{N}{4\pi}$ será o número de fissões por unidade de volume e por unidade de ângulo sólido.

O ângulo sólido elementar é dado por:

$$d\Omega = 2\pi \sin \theta d\theta$$

Assim, o número de fissões por unidade de volume que formam com a perpendicular à superfície um ângulo compreendido entre θ e $\theta + d\theta$ será:

$$n(\theta) d\theta = \frac{N}{4\pi} d\Omega = \frac{N}{4\pi} 2\pi \sin \theta d\theta$$

$$n(\theta) d\theta = \frac{1}{2} N \sin \theta d\theta$$

O número dessas fissões que proveem de uma distância da superfície entre z e $z + dz$ será:

$$n(\theta) d\theta dz = \frac{1}{2} N \sin \theta d\theta dz \quad (8)$$

Utilizando (7) e (8) podemos determinar o número de fissões por unidade de volume que formam com a normal à superfície um ângulo entre θ e $\theta + d\theta$ e que são possíveis de serem revelados, ou seja, que atravessam a superfície; tal seja:

$$\mathcal{N}(\theta) d\theta = \int_0^{z_{\max}} n(\theta) d\theta dz$$

$$\mathcal{N}(\theta) d\theta = \frac{1}{2} N \bar{R} \sin \theta \cos \theta d\theta \quad (9)$$

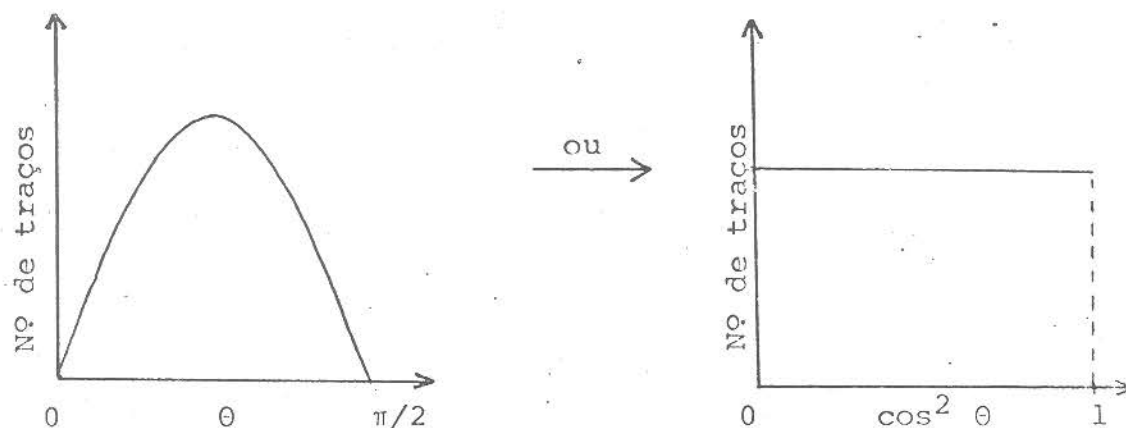
Portanto, se os traços de fissão se distribuírem isotropicamente no ângulo sólido e uniformemente em profundidade, a distribuição do número de traços revelados em função do ângulo zenital θ terá a forma de $(\sin \theta \cos \theta)$.

É conhecido que se um conjunto de dados tem função distribuição $f(x)$, a função

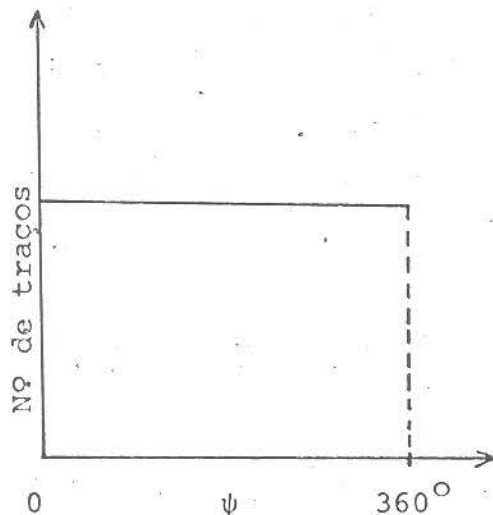
$$Y(x) = L \int_{x_{\min}}^x f(t) dt$$

se distribuirá uniformemente no intervalo L .

No caso estudado pode-se então expressar:



Com relação a distribuição dos traços em função do ângulo azimutal podemos dizer que será uniforme se os traços de fissão se distribuírem isotropicamente no ângulo sólido, ou seja:



APÊNDICE 3

Análise harmônica de um conjunto de N dados, ponto por ponto.

Seja um conjunto de N pontos no intervalo de 0 a L

Suporemos a nossa função de distribuição do tipo:

$$f(x) = \sum_{n=0}^{\infty} \{a_n \cos n x + b_n \sin n x\}$$

Logo, devemos ter:

$$\int_{x_m}^{x_n} f(x) dx = 1 \Rightarrow a_0 = \frac{1}{x_n - x_m} = \frac{1}{L}$$

Então $f(x)$ ficará:

$$f(x) = \frac{1}{L} \left[1 + \sum_{n=1}^{\infty} \{a_n \cos n x + b_n \sin n x\} \right]$$

Determinando o momento de 1ª ordem para $\cos x$ teremos:

$$\begin{aligned} \mu_{\cos x} &= \int_0^{2\pi} \cos x f(x) dx \\ &= \int_0^{2\pi} \cos x \left\{ \frac{1}{L} (1 + a_1 \cos x + b_1 \sin x + a_2 \cos 2x + b_2 \sin 2x + \dots) \right\} dx \end{aligned}$$

$$\mu_{1 \cos x} = \frac{1}{L} \left[\int_0^{2\pi} \cancel{\cos x} dx + a_1 \int_0^{2\pi} \cos^2 x dx + b_1 \int_0^{2\pi} \cancel{\cos x} \sin x dx + \right. \\ \left. + a_2 \int_0^{2\pi} \cos 2x \cancel{\cos x} dx + \dots \right]$$

$$\mu_{1 \cos x} = \frac{1}{L} a_1 \int_0^{2\pi} \cos^2 x dx = \frac{a_1}{L} \left(\frac{1}{2} x + \frac{1}{4} \sin 2x \right) \Big|_0^{2\pi}$$

como $L = 2\pi$

$$\mu_{1 \cos x} = \frac{a_1}{2}$$

Analogamente:

$$\mu_{1 \sin x} = \frac{b_1}{2}$$

$$\mu_{1 \cos 2x} = \frac{a_2}{2}$$

$$\mu_{1 \sin 2x} = \frac{b_2}{2}$$

Podemos escrever os momentos como sendo:

$$\mu_{1 \sin n x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \sin n x_i$$

$$\mu_{\cos n x} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \cos n x_i$$

Seus erros serão portanto dados pelas raízes quadradas das variâncias:

$$\Delta \mu_{\cos n x} = \sqrt{\left[\sum_{i=1}^N \frac{\cos^2 n x_i}{N} - \left(\sum_{i=1}^N \frac{\cos n x_i}{N} \right)^2 \right] / N}$$

$$\Delta \mu_{\sin n x} = \sqrt{\left[\sum_{i=1}^N \frac{\sin^2 n x_i}{N} - \left(\sum_{i=1}^N \frac{\sin n x_i}{N} \right)^2 \right] / N}$$

Portanto os coeficientes da nossa função de distribuição serão:

$$a_n = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^N \cos n x_i$$

$$b_n = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^N \sin n x_i$$

E seus erros:

$$\Delta a_n = 2 \sqrt{\left[\sum_{i=1}^N \frac{\cos^2 n x_i}{N} - \left(\sum_{i=1}^N \frac{\cos n x_i}{N} \right)^2 \right] / N}$$

$$\Delta b_n = 2 \sqrt{\left[\sum_{i=1}^N \frac{\sin^2 n x_i}{N} - \left(\sum_{i=1}^N \frac{\sin n x_i}{N} \right)^2 \right] / N}$$

BIBLIOGRAFIA

- 1) P.B. Price e R.M. Walker, J. Appl. Phys. 33, 3.407 (1962)
- 2) E.C.H. Silk e R.S. Barnes, Phil. Mag. 4, 970 (1959)
- 3) G. Bigazzi, Tese de Laurea, Universidade de Pisa, Itália (1966)
- 4) R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker e E.L. Hulband,
Phys. Rev. 133 , A 1443 (1964)
- 5) G. Bigazzi, Earth and Planetary Science Letters 3 (1967)
434-438
- 6) R.L. Fleischer, P.B. Price e E.M. Symes, Science 143, 349 (1964);
R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, Geochim.
Cosmochim. Acta, 28, 1705, (1964)
- 7) P.P. Metha e Rama, Earth and Planetary Science Letters 7 , 82
(1969)
- 8) R.L. Fleischer, P.B. Price, R.M. Walker, Annu. Rev. Nucl.
Sci. 15, 1, (1965)
- 9) D.S. Miller, E. Tager, Earth. Plan. Sci. Lett. 4, 375 (1968);
D.S. Miller , Earth. Plan. Sci. Lett. 4, 379 (1968)