Universidade de São Paulo
Instituto de Física

Busca de Oligoelementos em Rochas Vulcânicas

Pedro Vinícius Guillaumon

São Paulo
2014

Universidade de São Paulo
Instituto de Física

Busca de Oligoelementos em Rochas Vulcânicas

Pedro Vinícius Guillaumon

Orientador: Prof. Dr. Iuda Dawid
Goldman vel Lejbman

Dissertação apresentada ao Instituto de Física da Universidade de São Paulo, para a obtenção de Título de Mestre em Ciências.

Banca Examinadora:

Prof. Dr. Iuda Dawid Goldman vel Lejbman (IFUSP)
Prof. Dr. Otaviano Augusto Marcondes Helene (IFUSP)
Prof. Dr. Ricardo Roberto Plaza Teixeira (IFSP)

São Paulo
2014

FICHA CATALOGRÁFICA

**Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo**

Guillaumon, Pedro Vinícius

Busca de Oligoelementos em Rochas Vulcânicas
São Paulo, 2014

Dissertação (Mestrado) – Universidade de São Paulo.
Instituto de Física. Depto. Física Experimental

Orientador: Prof. Dr. Iuda Dawid Goldman vel
Lejbman

Área de Concentração: Espectroscopia Nuclear

Unitermos: 1.Espectroscopia gama; 2. Ativação
por nêutrons térmicos; 3. Análise de rochas vulcânicas.

USP/IF/SBI-072/2014

Agradecimentos

Agradeço sinceramente ao Prof. Dr. Iuda Dawid Goldman vel Lejbman pelo interesse e dedicação com que acompanhou meus trabalhos, como também pelo apoio em todas as dificuldades passadas e pela preocupação com minha formação.

Agradeço ainda ao Prof. Dr. Eric B. Norman pela coorientação e pela inestimável dedicação para o desenvolvimento da experiência,

Agradeço ao Prof. Dr. Paulo R. Pascholati pela coorientação e pelo interesse com que me ajudou na análise dos dados, bem como pela revisão da dissertação,

A Keenan J. Thomas pela ajuda na parte experimental,

Aos Profs. Drs. Otaviano Helene e Vito Vanin pela discussões sobre métodos estatísticos,

Ao Prof. Dr. Paul Renne pelo suporte em questões geofísicas,

A Rita Teresa dos Santos pelo suporte necessário no laboratório de química,

Ao Prof. Dr. Tufic Madi Filho pelas irradiações no IPEN,

A Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES), ao Departamento de Física Experimental do Instituto de Física -USP, a Sociedade Brasileira de Física, a American Physics Society e a University of California at Berkeley (UCB) pelo auxílio financeiro durante parte da realização deste trabalho.

Resumo

Foram realizadas medidas de espectroscopia gama simples, de espectroscopia gama-gama em anti-coincidência e coincidência em dezessete amostras de rochas vulcânicas irradiadas com nêutrons térmicos.

Foram determinadas, utilizando cálculo covariante, 33 elementos químicos (*Al, As, Ba, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Dy, Eu, Fe, Hf, K, La, Lu, Mg, Mn, Na, Nd, Rb, Sb, Sc, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Ti, U, Yb, Zn e Zr*), dos quais 21 elementos traço.

Foi determinado o limite máximo de detecção para o irídio em 11 amostras. Foi obtido um valor máximo de 0,7 ppb.

Os resultados foram comparados com o processo astrofísico de formação da Terra. A concentração de urânio e tório variou entre 3 ppm e 9 ppm, com exceção das amostras de Kilimanjaro, que variou entre 40 ppm e 45 ppm. Abaixo da concentração de 12 ppm presentes na crosta terrestre. Espera-se concentrações menores devido a estimativas de tório e urânio através do calor emitido pela Terra.

Foram determinados 10/17 lantanídeos, com destaque para a abundância de *Ce* em Kilimanjaro, cujos valores obtidos foram de 272(6) ppm e 319(11) ppm.

Palavras-chave: ativação por nêutrons térmicos, espectroscopia gama, análise de rochas vulcânicas

Abstract

Single gamma ray spectroscopy, gama-gama coincidence and anticoincidence spectroscopy have been performed to study 17 volcanic rocks irradiated with neutrons.

We have determined, using covariant calculations, 33 chemical elements including 21 trace elements: *Al, As, Ba, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Dy, Eu, Fe, Hf, K, La, Lu, Mg, Mn, Na, Nd, Rb, Sb, Sc, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Ti, U, Yb, Zn* e *Zr*.

We set a maximum limit of detection for iridium in 11 samples. We have determined a maximum value of 0,7 ppb.

The results were associated to the astrophysical process that led to the Earth formation. Thorium and uranium abundance ranged between 3 *ppm* e 9 *ppm*, except for the samples of Kilimanjaro, which ranged from 40 *ppm* to 45 *ppm*. Less than 12 *ppm*, the Earth's Crust abundance of thorium and uranium. Using the heat emitted by Earth to estimate the abundance of them led to significant lower values.

We have also determined 10/17 lanthanides, like *Ce* that has an abundance of 272(6) *ppm* and 319(11) *ppm*, in the case of Kilimanjaro's samples.

Keywords: NAA, gamma spectroscopy, volcanic rocks analysis

Lista de Figuras

1	Abundâncias do Sistema Solar e Terra	2
1.1	Desenho esquemático de uma reação de captura ressonante	10
1.2	Diagrama dos níveis de energia do ^{13}N para a reação de núcleo composto $^{12}\text{C}(p,\gamma)^{13}\text{N}$	11
1.3	Desenho esquemático para os processos r , s e p	16
1.4	Tabela periódica segundo a classificação de Goldschmidt	26
1.5	Abundância dos elementos no Sistema Solar, $Z = 1$ até $Z = 37$	28
1.6	Abundância dos elementos no Sistema Solar por número atômico	29
1.7	Abundância dos elementos no Sistema Solar, $Z = 38$ até $Z = 80$	30
1.8	Abundância dos elementos na crosta terrestre	31
2.1	Diagrama da eletrônica de espectroscopia simples	35
2.2	Curva de eficiência para amostras a 10 <i>cm</i> do detector	39
2.3	Curva de eficiência para amostras encostadas no detector	40
2.4	Curva de eficiência para amostras a 12 <i>cm</i> do detector	40
2.5	Efeito Compton no espectro de Kilimankaro 1	46
2.6	Pico de 74,7 keV do ^{239}U para diferentes medidas da amostra Kilimanjaro 1.	50
2.7	Pico de 559 keV do ^{76}As para medidas de Kilimanjaro 1.	52
2.8	Pico de 2522 keV do ^{140}La para medidas de Kilimanjaro 1.	53

2.9	Pico de 145,4 keV do ^{141}Ce para diferentes medidas da amostra Mauna Loa.	54
2.10	Curva de decaimento para o pico de 145,4 keV do ^{141}Ce	55
2.11	Atividade radioativa do ^{177}Lu para o gama de 208,4 keV para diferentes medidas da amostra Mauna Loa.	56
2.12	Pico de 1115 keV do ^{65}Zn para medidas de Kilimanjaro 1	57
2.13	Esquema de níveis do ^{233}Pa	58
2.14	Pico de 514 keV do ^{85}Sr para medidas de Kilimanjaro 1.	59
2.15	Curva de decaimento para o pico de 320,1 keV do ^{51}Cr	60
2.16	Pico de 724 keV do ^{95}Zr para medidas de Kilimanjaro 1.	61
2.17	Esquema de níveis do ^{152}Eu	62
2.18	Espectro total de Kilimanjaro 1 obtido 30,7 <i>min.</i> após a irradiação . . .	63
2.19	Espectro total de Kilimanjaro 1 obtido 49,5 <i>min.</i> após a irradiação . . .	64
2.20	Espectro do <i>eppendorf</i> irradiado	65
2.21	Espectro total de Kilimanjaro 2 obtido 11 dias após a irradiação	66
2.22	Espectro de Kilimanjaro 2 de 0 a 500 keV	67
2.23	Espectro de Kilimanjaro 2 de 500 a 1000 keV	68
2.24	Espectro de Kilimanjaro 2 de 1000 a 1500 keV	69
2.25	Espectro de Kilimanjaro 2 de 1500 a 2000 keV	70
2.26	Espectro de Kilimanjaro 2 de 2000 a 2500 keV	71
2.27	Espectro de Kilimanjaro 2 de 2500 a 3100 keV	72
2.28	Espectro total de Kilauea obtido 73 dias após a irradiação	73
2.29	Desenho esquemático da geometria do sistema de anticoincidência	77
2.30	Diagrama da eletrônica do sistema de espectroscopia gama em anticoincidência	80
2.31	Espectro de anticoincidência de Ruanda	81
2.32	Diagrama da eletrônica do sistema de espectroscopia gama em coincidência	87

2.33	Espectro em coincidência do irídio	89
2.34	Espectro simples do irídio	90
2.35	Espectro em coincidência de Islândia 2	90
2.36	Esquema de níveis do ^{192}Ir	91
2.37	Espectros em coincidência com região de 468 <i>keV</i> ampliada para Equador 1 e 2.	92
2.38	Espectros em coincidência com região de 468 <i>keV</i> ampliada para Islândia 1 e 2.	92
2.39	Espectros em coincidência com região de 468 <i>keV</i> ampliada para Mt. Etna 1 e 2.	93
2.40	Espectros em coincidência com região de 468 <i>keV</i> ampliada para Índia 2 e basalto indiano.	93
2.41	Espectros em coincidência com região de 468 <i>keV</i> ampliada para Uganda 1 e 2.	94
2.42	Espectros em coincidência com região de 468 <i>keV</i> ampliada para Ruanda e cerâmica padrão.	94
3.1	Tabela periódica com os elementos químicos presentes nas amostras . . .	95
3.2	Localização dos vulcões do Havaí de onde foram obtidas amostras	103
3.3	Concentração de ferro por amostra do Havaí	104

Lista de Tabelas

1.1	Propriedades de moderação de nêutrons para isótopos diferentes	7
1.2	Estimativa de Weisskopf para decaimento γ	11
1.3	Classificação de Goldschmidt	25
2.1	Principais gamas utilizados para calibração de energia	41
2.2	Concentração de elementos presentes na cerâmica padrão	48
2.3	Abundância de elementos em rochas vulcânicas do Havaí e Kilimanjaro em ppm	74
2.4	Abundância de elementos em rochas vulcânicas do Havaí e Kilimanjaro na escala siderófila	75
2.5	Abundância (em ppm) de elementos em amostras do Equador, Islândia e Índia	82
2.6	Abundância (em ppm) de elementos em amostras do Mt. Etna, Ruanda e Uganda	83
2.7	Abundância de elementos em amostras do Equador, Islândia e Índia (es- cala siderófila)	84
2.8	Abundância de elementos em amostras do Mt. Etna, Ruanda e Uganda (escala siderófila)	85
2.9	Limite máximo de detecção para o irídio	89

3.1	Elementos químicos identificados nas amostras de rochas vulcânicas, por classificação química	96
-----	--	----

Sumário

1 Aspectos Teóricos de Irradiações por Nêutrons Térmicos	5
1.1 Captura de Nêutrons	6
1.1.1 Produção de Nêutrons Térmicos	6
1.2 Atividade Radioativa	8
1.3 Seção de choque	8
1.3.1 Ressonância Nuclear	9
1.4 Nucleossíntese Estelar	12
1.4.1 $A \lesssim 60$	12
1.4.2 $A > 60$	16
1.4.3 Urânio, Tório e Geoneutrinos	21
1.4.4 Abundância esperada de Urânio e Tório através do calor emitido para a Terra	22
1.5 Abundância dos Elementos na Crosta Terrestre	24
1.6 Concentração dos Elementos no Sistema Solar e na Terra	27
2 Espectroscopia Gama Simples, de Anti-Coincidência e Coincidência	33
2.1 Espectroscopia Gama Simples	33
2.1.1 Preparação de Alvos	33
2.1.2 Arranjo Experimental	34
2.1.3 Descrição Experimental	35

2.1.4	Calibração	37
2.1.5	Cerâmica Padrão	42
2.1.6	Efeitos de Detecção	43
2.1.7	Obtenção de Abundância	47
2.1.8	Resultados	49
2.1.9	Irradiações Curtas	49
2.1.10	Irradiações Longas	50
2.2	Espectroscopia Gama em Anti-Coincidência e Coincidência	76
2.2.1	Arranjo Experimental de Anti-coincidência	76
2.3	Espectroscopia Gama em Coincidência	86
3	Discussão dos resultados	95
4	Conclusão	105
	Referências Bibliográficas	107
A	Determinação das Incertezas das Abundâncias	113
A.1	Variância de funções de várias variáveis aleatórias covariantes	113
B	Limites de Detecção	117
B.1	Limite Crítico de Detecção	117
B.2	Limite Máximo de Detecção	118
B.2.1	Mais de um Pico de Interesse	120

Introdução

O estudo da composição de rochas vulcânicas, fornece subsídio para o entendimento da composição física do manto superior terrestre com ênfase para o caso de elementos traço, algo não totalmente bem determinado, assim como do processo astrofísico da formação terrestre, já que o material magmático expelido por vulcões origina-se do manto superior, ou seja, de uma fonte de lava de profundidade média de 50 km.

Irradiação de nêutrons térmicos, com energia de 25 meV , constitui um importante instrumento da Física Nuclear Pura e Aplicada, seja para o estudo da estrutura nuclear, seja para o da composição de elementos químicos em amostras, devido principalmente por possuir valores de seção de choque de absorção significativos para diversos isótopos. Historicamente, nêutrons térmicos foram primeiramente utilizados por Fermi, que estudou a moderação de nêutrons, e posteriormente por Meitner, Hahn e Strassman, nos estudos que levaram à descoberta da fissão nuclear. Estes trabalhos foram mais adiante significativos para o desenvolvimento da bomba atômica e de reatores nucleares. Reatores são utilizados para produção dos feixes nêutrons térmicos intensos que foram utilizados neste trabalho.

Dezessete amostras de rochas vulcânicas (do Havaí, Kilimanjaro, Equador, Islândia, Índia, Mt. Etna, Ruanda e Uganda) foram irradiadas com nêutrons térmicos e foram realizadas medidas de espectroscopia gama de alta precisão com detectores de germânio hiper-puro (HPGe), espectroscopia gama em anti-coincidência (NaI-HPGe), espectroscopia gama em coincidência (HPGe-HPGe) e acompanhamento de decaimento,

permitindo a determinação de 33 elementos distintos presentes nestas amostras, a saber, *Al, As, Ba, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Dy, Eu, Fe, Hf, K, La, Lu, Mg, Mn, Na, Nd, Rb, Sb, Sc, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Ti, U, Yb, Zn* e *Zr*.

A abundância de elementos na crosta terrestre (Lide, 2009) apresenta acentuadas diferenças com aquela observada no Sistema Solar (Lodders, 2010), como pode ser visto na figura 1. Como estes elementos não são produzidos pelo Sol é razoável esperar que a composição média de elementos traço na Terra seja a mesma, em primeira aproximação. A análise de elementos obtidos em rochas vulcânicas, provenientes do manto superior ($\approx 35\text{--}60$ km), é um passo para o entendimento destas divergências, uma vez que pode fornecer indicativos de uma dependência da abundância de elementos traço com a profundidade, de forma que a média seja mantida. Estimativas usuais da composição do núcleo e manto terrestres através das ondas sísmicas só permitem a estimativa dos componentes principais destas camadas (Jackson, 1998).

Figura 1: Abundâncias do Sistema Solar e Terra, (Wolfram Research, 2012).

Neste sentido, é de especial interesse medições de tório e urânio, uma vez que além

de haver na crosta terrestre concentrações muito superiores àquelas do Sistema Solar, medidas do calor emitido pela Terra (devido fundamentalmente ao decaimento de isótopos radiativos naturais, caso de urânio e tório) estimam uma abundância média de 0,2 *ppm* para eles. Na crosta terrestre há 12,3 *ppm* enquanto nas amostras medidas há menos de 8 *ppm*, com exceção de Mauna Loa, Havaí, com 11,5 *ppm* e Kilimanjaro com ≈ 40 *ppm*. Desta forma, as medidas realizadas dão indicações de uma diminuição na concentração de urânio e tório no manto em relação à crosta, consistente com o já supracitado para o calor emitido pela Terra. Há outra maneira de se medir a concentração de urânio e tório no interior da Terra: através de geoneutrinos, neutrinos emitidos pela decaimento β destes isótopos. Entretanto, pela dificuldade da medida, pois os neutrinos terrestres são de baixa energia quando comparado aos neutrinos solares medidos, e falta de detectores de neutrinos suficientes, ainda não há resultados conclusivos, de maneira que as presentes medições podem fornecer novas condições para modelos terrestres (Huang et al., 2013).

No caso das amostras do Havaí é possível também estudar a hipótese de que as ilhas principais foram formadas por dois canais distintos de lavas. A hipótese mais aceita indica que há apenas um, mas estudos recentes apresentam indícios em contrário (através de medição da razão $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ em rochas magmáticas de vulcões distintos do Havaí). No presente trabalho, há indicativos consistentes, mas não conclusivos de que há realmente dois canais de lavas distintos. Para isso, analisou a concentração de ferro em rochas vulcânicas e $z_{\text{crítico}} = 3^1$.

Finalmente, a teoria mais aceita para a extinção dos dinossauros, formulada por Luis Alvarez, Frank Asaro et al (Alvarez et al., 1980) atribui ao impacto de um meteoro na superfície terrestre a causa para a extinção em massa deles. Esta foi verificada

¹ $z_{\text{crítico}}$: supondo os dados gaussianos, pode ser definido a seguinte variável z , t.q., $z = \frac{\langle d_1 \rangle - \langle d_2 \rangle}{\sigma_m}$, onde $\langle d_i \rangle$ é a média de determinado resultado e σ_m a incerteza relativa. Neste caso, o nível de significância α corresponderá a probabilidade de se rejeitar a hipótese se ela for verdadeira, i.e., $\alpha = P(z < z_{\text{crítico}} \text{ ou } z > z_{\text{crítico}})$. Para $z_{\text{crítico}} = 1,96$, $\alpha = 5\%$.

primeiramente através da análise da concentração de irídio em Chicxulub, Yucatán, México, onde claramente há evidências de impacto de um meteoro. Foram medidas concentrações de irídio muito superiores ($\approx 10^2$ *ppb*) àquelas presentes na superfície terrestre (1 *ppb*), mas compatíveis com a quantidade presente no Sistema Solar, corroborando para a aceitação da hipótese do impacto de meteoros para a extinção em massa de dinossauros. Tal teoria, embora aceita, não é consenso. Existem especulações nas quais vulcões podem ter liberado quantidades massivas de irídio nesta mesma época, apoiando-se em claras evidências de intensas atividades vulcânicas do período. Há tentativas de medir irídio em rochas vulcânicas do período da extinção dos dinossauros e fora dele ([Hatsukawa et al., 2012](#); [Zajzon et al., 2012](#)) a fim de associar atividades vulcânicas com este processo de extinção, porém não há nenhum estudo conclusivo. Foram realizadas medidas em coincidência com detectores de germânio para que haja maior subsídio experimental para o esclarecimento desta questão. Foi estabelecido um *limite superior de detecção* para o irídio da ordem de 10^{-1} *ppb* nas amostras.

Capítulo 1

Aspectos Teóricos de Irradiações por Nêutrons Térmicos

Resumo

Neste capítulo discutir-se-á alguns aspectos teóricos importantes para se entender a irradiação por nêutrons e os resultados provindos dela. Além disso, análise por ativação de nêutrons térmicos ($E \approx 10^{-2}eV$), por possuírem seções de choque de captura relativamente significantes, são amplamente utilizados para a determinação de oligoelementos com abundância até partes por bilhão (ppb).

Ademais, serão discutidas reações nucleares de interesse na nucleossíntese dos elementos, pois serão importantes para a análise dos resultados obtidos pela irradiação de nêutrons térmicos.

Por fim serão discutidos o processo de distribuição de elementos na crosta terrestre e sobre a abundância esperada de tório e urânio na Terra como um todo, relacionando-se com medidas do calor emitido por ela e com possibilidades de fornecer condições de contorno para experiências com geoneutrinos. Estes aspectos aqui discutidos serão fundamentais para as discussões astrofísicas realizadas no capítulo 3.

1.1 Captura de Nêutrons

No caso de nêutrons térmicos a reação mais provável é a de captura de nêutrons com emissão de fótons uma vez que provavelmente após a reação o novo isótopo estará em um estado excitado. Devido a este carácter da reação, nêutrons térmicos são uma ótima ferramenta no estudo da estrutura nuclear, em particular na determinação da energia e paridade dos estados formados. Seja $\mathbf{I}'$ o spin do estado formado, $\mathbf{I}$, o spin do alvo antes da reação, $\mathbf{l}$ e $\mathbf{s}$, o momento angular e spin do nêutron, respectivamente. Por conservação de momento angular, $\mathbf{I}' = \mathbf{I} + \mathbf{l} + \mathbf{s}$ e a paridade será $\pi' = \pi(-1)^l$. No caso de nêutrons térmicos (baixas energias), apenas ondas s estarão presentes, de forma que $I' = I \pm 1/2$ e $\pi' = \pi$. Considerando conjuntamente as regras de seleção (conservação de paridade) para o decaimento γ , é possível estudar de maneira completa a estrutura nuclear de estados excitados. Por exemplo se o núcleo inicial está no estado 0^+ , os estados finais possíveis serão $I' = \pm 1/2$.

1.1.1 Produção de Nêutrons Térmicos

Existem inúmeras formas possíveis para se produzir um feixe de nêutrons, basicamente produzindo reações (x,n) . Entretanto, é muito difícil produzir um feixe monoenergético, uma vez que nêutrons não interagem eletromagneticamente. Pode-se utilizar fontes de α em reações (α,n) , o que também não produz nêutrons monoenergéticos ou utilizar um isótopo com apenas um γ intenso, ou seja, uma fonte monoenergética de γ para produzir estes nêutrons. Entretanto, estes processos não são eficientes, no sentido de se produzir um fluxo de nêutrons intenso, algo necessário em estudos com nêutrons térmicos.

O procedimento comumente adotado para a produção de um fluxo intenso de nêutrons térmicos é a utilização de reatores, onde isótopos fissionáveis são utilizados. Um dos elementos mais utilizados em reatores é o urânio, porém, a fim de exemplificação,

tome o caso do ^{252}Cf , cuja meia-vida é $T_{1/2} = 2,65 \text{ a}$ e possui ramificação para fissão espontânea de 3 %. A cada fissão são emitidos 4 nêutrons, de forma que o fluxo de nêutrons será de $\Phi = 2,3 \cdot 10^{12}$ nêutrons/(s · g de ^{252}Cf), cuja distribuição de energia variará entre 1 MeV e 3 MeV, ou seja, pequenas quantidades de material físsil são suficientes para o estabelecimento de um fluxo intenso de nêutrons.

Para se obter nêutrons térmicos é necessário um moderador. Na ausência de interação eletromagnética e a baixas energias podemos então supor que só ocorrerão espalhamentos elásticos. Considerando classicamente nêutrons com energia inicial E , final E' , ângulo de espalhamento ψ e um moderador constituído por só um elemento químico de massa m , por conservação de energia e momento, é trivial: $E' = \frac{A^2+1+2\cos\psi}{(A+1)^2}E$, onde A é o número de massa e ψ é o ângulo de espalhamento no centro de massa. Como ocorrerão n colisões teremos um espectro de energia para os nêutrons espalhados.

Para se estimar o número de colisões necessárias para se termalizar os nêutrons, é útil definir o parâmetro ξ que representa justamente a média da perda de energia por colisões, ou seja, $\xi = \left[\log \frac{E}{E'}\right]_{\text{médio}} = \frac{\int \log \left[\frac{E}{E'}\right] d\Omega}{\int d\Omega} = 1 + \frac{(A-1)^2}{2A} \log \frac{A-1}{A+1}$ e, assim, após n colisões tem-se que $n = \frac{1}{\xi} \left(\log \frac{E}{E'_n}\right)$, onde E'_n é a energia do nêutrons após n colisões.

Abaixo segue uma tabela com o isótopo usado como moderador de nêutrons e o número de colisões n necessárias para que se ocorra a termalização.

Tabela 1.1: Propriedades de moderação de nêutrons para isótopos diferentes. Tabela retirada de (Krane, 1987, p. 450).

Isótopo	n (para termalização)
^1H	18
^2H	25
^4He	43
^{12}C	110
^{238}U	2200

1.2 Atividade Radioativa

Um aspecto importante para se relacionar experimentalmente seções de choque e intensidades das linhas γ é a atividade radioativa, quando o alvo é bombardeado por partículas de fluxo Φ de forma a produzir um isótopo radioativo. Considerando que a variação deste isótopo é proporcional ao número de isótopo produzidos menos o decaimento devido ao decaimento radioativo ($dN_1/dt = N_0\sigma\Phi - \lambda_1 N_1$), temos que:

$$\mathcal{A} = N_0 \sigma \Phi (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.1)$$

onde N_0 é o número de átomos presentes no alvo, σ a seção de choque, λ é a constante de decaimento e $\mathcal{A}$ a atividade radioativa. Ou, de forma mais conveniente,

$$\mathcal{A} = 0,602 \frac{m}{M} \Phi (1 - e^{-\lambda t}) \quad (1.2)$$

,onde m é a massa do alvo, em gramas, e M a massa atômica do mesmo, Φ está em partículas/($cm^2 \cdot s$) e $\mathcal{A}$ em *Becquerel*.

1.3 Seção de choque

A seção de choque para nêutrons apresenta dois comportamentos principais. O primeiro, fora da ressonância, apresenta uma dependência com o inverso da velocidade, assim, a taxa de reação $\langle\sigma v\rangle \equiv \textit{constante}$, o que permite utilizar os valores de seção de choque para nêutrons térmicos tabelados na Literatura ([NNDC, 2014](#)). O segundo, na ressonância, conforme descrito por Breit e Wigner, será detalhado na subseção subsequente ([1.3.1](#)).

Inicialmente, considere uma estimativa semi-quântica para a seção de choque. O momento angular relativo, τ é dado por $\tau = p \cdot b = l \cdot \hbar$, onde p é o momento angular relativo, $\hbar$, a constante de Planck, b o parâmetro de impacto e l é o momento angular.

Ou seja, $b = l\hbar p = l\lambda$. A seção de choque pode ser tomada como a área efetiva correspondente. Assim, dado uma partícula com momento angular entre l e $l + 1$, a seção de choque será $\sigma = \pi \left\langle [(l + 1)\lambda]^2 - [l\lambda]^2 \right\rangle = (2l + 1) \pi \lambda^2$, que é a região cujo parâmetro de impacto é $(l + 1)\lambda < b < l\lambda$, ou seja, com momento angular entre $(l + 1)$ e l . Agora somando sobre todas as configurações possíveis de momento angular, notando que o momento linear máximo $l_{\text{máx}}$ ocorre com a soma dos raios nucleares, i.e., $l_{\text{máx}} = R/\lambda$, $R = R_1 + R_2 = 1,25 \cdot (A_1^{1/3} + A_2^{1/3})$, R em fm , e que a soma é uma progressão aritmética, temos que

$$\sigma = 1.25\pi \left(A_1^{1/6} + A_2^{1/6} + \lambda \right)^2 \quad (1.3)$$

onde λ é dado em fm .

Como exemplo, tome o caso do ^{11}B , que possui uma seção de choque na ressonância de $\approx 10^4 b$. Considerando a energia de nêutrons térmicos de $10^{-2} eV$, a massa do nêutron de $\approx 939 MeV/c^2$, tem-se que a seção de choque será da ordem $10^7 b$. Muito além do valor experimental, porém reproduzindo valores gigantes para o caso da ressonância, o que demonstra um sucesso qualitativo com este cálculo simplificado.

1.3.1 Ressonância Nuclear

O caso em que ocorre reações de ressonância é de particular interesse devido a grande probabilidade de interação e a larguras de decaimento pequenas a baixas energias, o que explica seções de choque elevadas com nêutrons para alguns isótopos. Se a soma das energias dos núcleons no canal de entrada ($Q + E_R$), corresponde à um particular nível de um estado ressonante, Q é a diferença entre a energias cinéticas final e inicial e E_R , a energia de ressonância, então estas reações ocorrerão, o que equivale a se ter funções de onda da partícula incidente e do potencial nuclear maximizando a probabilidade de penetração. Reações de ressonância, conforme explicação em 1.4, são de enorme

importância em processos astrofísicos e são esquematizadas nas figuras 1.1 e 1.2.

Figura 1.1: Desenho esquemático de uma reação de captura ressonante. (Regan, 2006, p. 51)

Desta forma, a seção de choque será descrita pela fórmula de *Breit-Wigner*:

$$\sigma_{sc} = \pi \lambda^2 \frac{2I + 1}{(2s_1 + 1)(2s_2 + 1)} \frac{\Gamma_i \Gamma_f}{(E - E_R)^2 + \Gamma^2/4} \quad (1.4)$$

onde I é o momento angular total do estado ressonante, s_i o spin das partículas incidentes ou alvo, $\Gamma = \sum_i \Gamma_i$ é a largura total do estado ressonante, Γ_i é o canal de entrada, Γ_f é o canal de saída e E_R , a energia de ressonância. Esta fórmula só é válida para energias próximas ao pico de ressonância.

É razoavelmente esperado que a seção de choque tenha este comportamento. Considere um circuito elétrico, por exemplo um circuito RLC. Se se ajustar a frequência de forma que esta esteja na ressonância, tem-se uma impedância mínima e o comportamento matemático será exatamente o mesmo da fórmula de Breit-Wigner. Foi esta a analogia feita por Wigner para justificar a plausibilidade desta equação (Wigner, 1949).

Considere uma reação (n, γ) na ressonância. A largura do decaimento, Γ_γ , pode

Figura 1.2: Diagrama dos níveis de energia do ^{13}N para a reação de núcleo composto $^{12}\text{C}(p,\gamma)^{13}\text{N}$, (Clayton, 1984, p. 349).

ser estimada através das estimativas de Weisskopf (1.2). Como Γ_γ essencialmente não depende da energia do nêutron, nota-se que fora da ressonância ($E \ll E_R$), $\sigma \propto \frac{1}{v}$. Desta forma é possível fazer estimativas de seção de choque para reações (n,γ) .

Tabela 1.2: Probabilidades de decaimento para transições γ elétrica e magnética de primeiras e segunda ordem, segundo a estimativa de Weisskopf. Tabela retirada de (Lide, 2009).

Transição	λ
$E1$	$1,0 \cdot 10^{14} A^{2/3} E_\gamma^3$
$M1$	$3,1 \cdot 10^{13} E_\gamma^3$
$E2$	$7,4 \cdot 10^7 A^{4/3} E_\gamma^5$
$M2$	$2,2 \cdot 10^7 A^{2/3} E_\gamma^5$

1.4 Nucleossíntese Estelar

Nesta seção serão discutidas de maneira mais qualitativa as reações que deram origem aos elementos químicos encontrados na Terra. Serão destacadas os processos de fusão, lento e rápido, bem como o ciclo CNO, (Clayton, 1984). É importante notar o papel desempenhado pelo fator astrofísico, pois, quando isto ocorre, a seção de choque aumenta significativamente e, por conseguinte, a taxa de reação, o que faz com que certas reações sejam factíveis.

1.4.1 $A \lesssim 60$

A produção de elementos com número de massa inferior a 60 ocorre majoritariamente por reações de fusão com partículas carregadas, principalmente reações de α_s e prótons, o que é evidenciado pela abundância de elementos de carbono até o cálcio, decrescendo uniformemente até o ferro ($N(Fe) = 7,46$, na escala logarítmica astronômica, ($N(Fe)$ é o logaritmo do número de átomo de ferro para uma normalização de 10^{12} átomos de hidrogênio).

Naturalmente, para começar a produção de elementos químicos em estrelas a partir do hidrogênio é necessário a seguinte reação:

Uma vez que dêuterons são formados ocorre a síntese de hélio em estrelas. Como a taxa de reação de dêuterons formados é muito pequena (≈ 1 dêuteron/ 10^{18} prótons), a reação entre dêuterons e prótons é mais provável do que entre dois dêuterons:

Como não há 4Li estável, reações entre hélio e prótons são fortemente inibidas.

Além disso, como mencionado anteriormente, a produção de dêuterons é pequena, de forma que a reação com ${}^3\text{He}$ também é inibida. Até porque, dada a proporção entre prótons e dêuterons, uma vez que dêuterons são formados, rapidamente são convertidos em hélio. Assim, a reação mais provável dar-se-á entre dois ${}^3\text{He}$, que resultará na produção de α_s .

De forma que mais prótons são produzidos, permitindo que o ciclo continue. A reação total pode ser esquematizada abaixo:

que produz a energia convertida em radiação no Sol. Em verdade, é um pouco menos, uma vez que não foram incluídos neste balanço a emissão de neutrinos que não contribuem para o aquecimento da fotosfera.

A produção de isótopos mais pesados que o ${}^4\text{He}$ acaba sendo dificultada pelo fato de não haver isótopos estáveis próximos. Por exemplo, é intuitivo que a reação ${}^4\text{He} + x \rightarrow {}^5\text{Y} + z$ deveria ser mais provável, uma vez nesta fase do ciclo estelar o próton é muito presente e, a menos de questões de estrutura nuclear e ressonância, apresentaria a maior taxa de reação. Entretanto, por não haver isótopo estável de número de massa 5, esta reação é inibida. Reação com 2 α_s também são fortemente inibidas pelo fato de que ${}^8\text{Be}$ também é instável. Reações com três partículas também são improváveis. Mas, uma vez que α são produzidos, estes podem interagir com ${}^3\text{He}$, produzindo ${}^7\text{Be}$.

Em seguida há dois possíveis ciclos, com mesmo valor Q de reação. O processo que

ocorrerá dependerá da composição e temperatura da estrela (a reação com 8B também ocorre em menor escala no Sol, produzindo neutrinos; foram estes os primeiros neutrinos solares detectados, por serem mais energéticos):

ou

O próximo ciclo de produção se dará com a síntese de ^{12}C cuja proposição inicial de reações possíveis foi sugerida por Fowler e Hoyle, ([Burbidge et al., 1957](#)). Devido a grande abundância de ^{12}C presente no universo, isso só é possível por uma ressonância próxima ao valor Q da reação para a produção de 8Be a partir de dois α_s , o que permite, à temperaturas de $T > 10^8\ K$ a reação em sequência de $3\alpha_s$:

onde E_R é a energia de excitação em que se encontra o ^{12}C quando formado. Uma vez ultrapassada esta *barreira* é possível dar sequência ao processo de fusão até o ^{56}Fe , quando a fissão torna-se energeticamente possível.

Em seguida, temos as reações do ciclo do carbono (CNO), cujas possibilidades foram inicialmente aventadas por Hans A. Bethe, ([Bethe, 1939](#)).

Este ciclo é mais rápido que o próton-próton, pois decorre de interações fortes ($\sigma \approx 10^{-24} \text{ cm}^2$), enquanto aquele, de interações fracas ($\sigma \approx 10^{-42} \text{ cm}^2$). Além disso, diferentemente da reação próton-próton, não possui um limitante como o deuteron, cuja proporção relativa em relação ao próton é extremamente pequena. Este ciclo continua até que não haja mais hidrogênio para dar prosseguimento. Uma vez que isso ocorre são viáveis reações de fusão entre α e ^{12}C . Este processo também explica porque há uma maior abundância entre isótopos de Z par, uma vez que o processo continua com a fusão de carbono ($Z = 6$) e α ($Z = 2$).

E assim por diante até a produção dos elementos de número de massa 56, ^{56}Ni (mas como é instável e possui meia-vida da ordem de dias, apenas é possível notar o ^{56}Fe). A probabilidade de reação diminui com o aumento do número de massa, devido ao aumento da barreira coulombiana, uma vez que o número de reações dependerá do fator de penetração.

1.4.2 $A > 60$

Para a síntese de elementos com número de massa superior a 60, processos de captura de nêutrons térmicos, (*s-process*), e nêutrons rápidos, *r-process*, são dominantes, como esquematizado na figura 1.3. Captura de nêutrons já foi discutida em 1.1.

Figura 1.3: Esquema mostrando em quais situações os processos *r*, *s* e *p* atuam, (Clayton, 1984, p. 547). O processo *p* refere-se a núcleos estáveis ricos em prótons e que não podem ser formados simplesmente pela captura de nêutrons.

s-process

No processo lento a síntese de elementos se dá através de reações (n,γ) atuando em conjunto com o decaimento β do isótopo instável formado. Se a intensidade do fluxo de nêutrons for baixa o suficiente para não tornar possível a captura de mais de um nêutron antes de ocorrer o decaimento do mesmo (o que acontece no processo rápido) dar-se-á o lento. Considere por exemplo o caso do ^{56}Fe :

E assim por diante, até o ^{209}Bi , que é o último isótopo estável a ser atingido por este processo.

Diversas reações (α,n) são energeticamente possíveis e permitem o estabelecimento de um fluxo de nêutrons que torna factível o processo lento:

A taxa de produção pode ser estimada considerando que a média do produto da

seção de choque para nêutrons térmicos pela respectiva velocidade termalizada é constante ($\langle\sigma v\rangle \equiv \text{constante}$). Para uma estrela vermelha a temperatura é $T > 10^8 \text{ K}$, então $\frac{3}{2}k_B T = \frac{1}{2}m_n v^2 \Rightarrow v \approx 10^6 \text{ m/s}$. Como a densidade de nêutrons para estas estrelas é da ordem de $n_n \approx 10^{14} \text{ m}^{-3}$, a taxa de reação média será $r \approx n_n \langle\sigma v\rangle = 10^{-9} \text{ s}^{-1}$, onde foi utilizado um valor de 0,1 b para a seção de choque para nêutrons.

Modelo da Urna de Ehrenfest para a taxa de produção de elementos através da captura de nêutrons no processo lento

Observando-se o gráfico de abundância por número de massa, [1.5](#), nota-se que para $A > 150$ tem-se uma assíntota horizontal. Mais que uma mera coincidência, isto decorre do equilíbrio entre formação e decaimento dos núcleos, ou, de outra forma, considerando-se aqueles cujos números de massa não possuem camada fechada, as seções de choque para captura de nêutrons são grandes, de maneira que $dN_A/dt = -\sigma_A N_A + \sigma_{A-1} N_{A-1} \approx 0$. Formalmente, isso pode ser generalizado inclusive para outros processos de nucleossíntese em se considerando o seguinte processo estocástico:

$$\begin{aligned} \frac{df_k(t)}{dt} = & W(k+1 \rightarrow k)f_{k+1}(t) + W(k-1 \rightarrow k)f_{k-1}(t) \\ & - W(k \rightarrow k+1)f_k(t) - W(k \rightarrow k-1)f_k(t) \quad (1.5) \end{aligned}$$

Que simplesmente modela discretamente a taxa de variação de encontrar a partícula no estado k , $f_k(t)$, como a probabilidade W de uma partícula no estado $k+1$ ou $k-1$ ir para o estado k multiplicado pela probabilidade desta partícula estar neste estado menos a probabilidade de partículas no estado k saírem deste estado. Esta fórmula pode ser aplicado a inúmeros contextos de nucleossíntese.

Por exemplo, a taxa de variação da produção de elementos com número de massa A pelo processo lento é dado pela probabilidade de captura de um nêutron por um

elemento de número de massa $A - 1$ menos a probabilidade de este elemento de número de massa A também capturar um nêutron, ou seja,

$$\frac{dN_A}{dt} \propto \underbrace{\sigma_{A-1}}_{W(k-1 \rightarrow k)} N_{A-1} - \underbrace{\sigma_A}_{W(k \rightarrow k+1)} N_A \quad (1.6)$$

similar ao visto anteriormente.

A vantagem deste modelo é que se pode incluir possíveis decaimentos destes elementos químicos, para os poucos casos em que a meia-vida do decaimento beta é grande, bem como incluir capturas pelo processo rápido, além de facilmente gerar um algoritmo computacional para descrever numericamente a produção e abundância de elementos químicos.

A solução desta equação diferencial ordinária é uma exponencial, de forma que para $t \rightarrow \infty$ observa-se o comportamento assintótico da cauda exponencial. Quando isto ocorre, o número de decaimentos atinge o equilíbrio, i.e., $\frac{dN_A}{dt} = 0$, ou seja, teremos que $\sigma_{A-1}N_{A-1} = \sigma_A N_A$, que de fato é verificado.

r-process

Alguns isótopos estáveis não podem ser produzidos simplesmente pela captura de um nêutron e decaimento β . Se a densidade de nêutrons e a meia-vida forem grandes o suficiente para permitir a captura de mais de um nêutron antes do sucessivo decaimento, capturas sucessivas podem predominar. Por exemplo:

Já para a produção de tório e urânio necessita-se a captura quase instantânea de múltiplos nêutrons devido às meias-vidas curtíssimas dos estados intermediários envol-

vidos.

É possível calcular a abundância dos elementos formados pelo processo rápido através de um modelo semelhante ao anterior, 1.4.2, i.e., $dn_Z(t)/dt = \lambda_{Z-1}n_{Z-1}(t) - \lambda_Z n_Z(t)$, onde $n_Z(t)$ é a abundância do elemento com carga Z e λ_Z é a taxa de decaimentos beta no ponto de espera, i.e., até o ponto em que, após a captura sucessiva de nêutrons, a energia de ligação impede a captura de mais um nêutron e tem de ocorrer decaimentos beta de forma a aumentar o número de carga Z sucessivamente até permitir novas absorções de nêutrons.

Fluxo de Nêutrons para reação com nêutrons

É possível estimar qual o fluxo de nêutrons "térmicos" para a produção de elementos através do processo s . Para isso, considere $\lambda \cdot t_{irr.} \ll 1$, que é válida para isótopos de meia-vida elevada, de forma que podemos fazer uma expansão de Taylor da exponencial do decaimento radioativo e temos que a taxa de produção de um isótopo é dada por

$$\mathcal{N} \approx \mathcal{N}_0 \sigma \Phi t_{irr.} \quad (1.7)$$

Considere um elemento qualquer situado na região do processo lento. A taxa de produção do urânio ou tório a partir dele, será dada, pois,

$$\mathcal{N}_0 (\sigma_1 \Phi t_{irr.1}) (\sigma_2 \Phi t_{irr.2}) \dots (\sigma_n \Phi t_{irr.n}) = \mathcal{N} \quad (1.8)$$

que pode ser reescrito da seguinte maneira:

$$\mathcal{R} = \frac{\mathcal{N}}{\mathcal{N}_0} = (\tilde{\sigma} \Phi \tilde{t}_{irr.})^n \quad (1.9)$$

onde $\tilde{\sigma}$ e $\tilde{t}_{irr.}$ são as médias geométricas da seção de choque e tempo de irradiação, respectivamente. Nota-se que $\mathcal{R}$ é compatível como solução de 1.6. Considerando

que a abundância do cério ($Z=58$) no sistema solar é de 0,5 na escala cosmoquímica de abundância (1.5), para o tungstênio ($Z=74$) a abundância é -0,5, então $n = 74 - 58 = 16$. Além disso, utilizando uma seção de choque média $\tilde{\sigma} = 100 \text{ mb}$ e considerando que o tempo de irradiação médio do processo lento é de 10^4 anos (1 ano é aproximadamente $3 \cdot 10^7 \text{ s}$), temos que o fluxo médio do processo lento é da ordem de $\Phi \approx \cdot 10^{15}$ nêutrons/($s \cdot \text{cm}^2$). É fácil também estimar a densidade de nêutrons em que este processo ocorre, uma vez que o tempo de captura de nêutrons é dado por $\tau_n = \frac{1}{n_n \langle \sigma v_T \rangle} \Rightarrow n_n \approx 10^5 \text{ cm}^{-3}$, onde se considerou que a velocidade média de nêutrons térmicos é $v_T \approx 3 \cdot 10^8 \text{ cm/s}$ e que $\langle \sigma v \rangle \approx \text{constante}$.

1.4.3 Urânio, Tório e Geoneutrinos

Em especial, há o interesse por medições de urânio e tório, uma vez que a abundância deles na crosta terrestre apresentam incompatibilidades com a do sistema solar e com o calor emitido pela Terra, que é produzido fundamentalmente pelos decaimentos destes isótopos.

Fluxo de Nêutrons para a produção de Urânio

Considere qual deve ser o fluxo de nêutrons para que a produção de urânio esteja em equilíbrio secular durante o processo astrofísico de produção (equações 1.6 e 1.7), $\mathcal{N}/\mathcal{N}_0 = 1$. Utilizando o ^{235}U como base, uma vez que o decaimento do ^{238}U produz mais ^{235}U ($^{238}\text{U} \rightarrow ^{235}\text{U}$), não alterando significativamente o cálculo do fluxo ¹, e que para tempos astrofísicos de irradiação não é necessário corrigir para o decaimento do ^{239}Pu ($T_{1/2} = 24110 \text{ a}$), tem-se novamente que o fluxo de nêutrons é $\Phi \approx \cdot 10^{22}$ nêutrons/($s \cdot \text{cm}^2$).

¹ É possível fazer a estimativa de qual deve ser o fluxo de nêutrons para que o ^{235}U e o ^{238}U estejam em equilíbrio. Como a meia-vida do urânio é $t_{1/2} \approx 10^9 \text{ a}$ e que a seção de choque para nêutrons epitérmicos é $\sigma = 277 \text{ b}$, então o fluxo estimado será $\Phi = (\sigma \cdot t_{1/2})^{-1} \approx 10^5$ nêutrons/($s \cdot \text{cm}^2$)

1.4.4 Abundância esperada de Urânio e Tório através do calor emitido para a Terra

O calor total emitido pela Terra é estimado em $44,2(10) \text{ TW}$, (Pollack et al., 1993). em observações de 20.201 lugares, cobrindo 62 % da superfície terrestre em quadriculados de $5^\circ \times 5^\circ$.

O calor emitido pela Terra é de fundamental importâncias em processos geofísicos, como vulcanismo e movimento de placas tectônicas. Boa parte deste calor é produzido devido a isótopos radioativos com meia-vida longa ainda presentes na Terra, como ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{138}La , ^{176}Lu e ^{87}Rb . Outra parte deve-se a processos de dissipação de calor, como efeitos hidrotérmicos de circulação em oceanos, crescimento do núcleo da Terra, entre outros. Subtraindo estes efeitos, o calor dissipado devido unicamente aos decaimentos radioativos é estimado aproximadamente entre 10 TW e 30 TW (Hofmeister and Criss, 2005), (Huang et al., 2013). Para efeito de estimativa, considere como $\approx 20 \text{ TW}$.

No caso dos isótopos radioativos, deve-se considerar a soma de todos os valores Q da reação da cadeia de decaimentos até o próximo isótopo estável. Assim, no caso do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , tem-se (os demais serão desprezados uma vez que o $Q_{total} \leq 0,5 \text{ MeV}$):

Entretanto, deve-se utilizar os espectros de neutrinos correspondentes para subtrair a componente da energia que é distribuída com o neutrinos, uma vez que não interagirão com a Terra, de forma que tem-se os seguintes valores, (Enomoto, 2005), $Q_{eff} = Q - Q_\nu$: $Q_U = 47,7 \text{ MeV}$, $Q_{Th} = 40,4 \text{ MeV}$, $Q_{K_{\beta^-}} = 0,531 \text{ MeV}$ e $Q_{K_{EC}} = 1,454 \text{ MeV}$. A menos que se suponha a proporcionalidade relativa entre urânio, tório e potássio na crosta também nas outras camadas da Terra, não há como separar a contribuição de cada um. A fim de se estimar a ordem de grandeza da abundância de tório e urânio somados, onde será desprezada a contribuição do potássio, pois o Q_{eff} dele é muito menor que os demais, será considerado o valor médio do Q_{eff} daqueles, $\tilde{Q} = 44 \text{ MeV}$.

Dessa forma, tem-se que:

$$\begin{aligned} 20 \text{ TW} &\approx 1,3 \cdot 10^{26} \text{ MeV/s} = \mathcal{R} (\text{reações por segundo}) \cdot 44 \text{ MeV/reação} \\ &\Rightarrow \mathcal{R} = 3 \cdot 10^{25} \text{ reações por segundo} \\ &\Rightarrow N = \mathcal{R}/\lambda = 3 \cdot 10^{25} \cdot 1,5 \cdot 10^{17} \text{ s} / \log(2) \approx 6,5 \cdot 10^{42} \text{ isótopos } \lrcorner \end{aligned}$$

ou, em partes por milhão (ppm):

$$\begin{aligned} \mathcal{C} &= \frac{6,5 \cdot 10^{42} \text{ isótopos}}{6 \cdot 10^{23} (\text{constante de Avogadro})} \frac{1}{6 \cdot 10^{24} \text{ kg (massa da Terra)}} \\ &\approx 0,2 \text{ ppm} \end{aligned}$$

Este resultado é discrepante com a abundância de urânio e tório presentes na crosta terrestre (maiores), de forma que espera-se uma diminuição destes no interior da Terra.

Um método utilizado atualmente, ainda sem resultados, é a medição de neutrinos emitidos pela Terra através da cadeia de ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K , já mencionados anteriormente. Entretanto, por haver poucos detectores de neutrinos ainda presentes, pelas

seções de choque pequenas para a força fraca e pelas dificuldades inerentes as medidas de geoneutrinos, medidas destes elementos em regiões mais profundas da Terra, como o manto superior, através de análise de nêutrons térmicos, podem ajudar na elaboração de hipóteses que dão origem à modelos de distribuição de urânio e tório, contribuindo na criação de métodos para medições de antineutrinos emitidos.

1.5 Abundância dos Elementos na Crosta Terrestre

O processo de distribuição de elementos que ocorre na Terra foi investigado inicial e principalmente por V. M. Goldschmidt, ([Goldschmidt, 1937](#), e.g), que criou a primeira teoria que justificasse a supressão de certas elementos, bem como a abundância de outros, se comparado com a abundância no Sistema Solar. Nesta seção serão discutidos os princípios gerais para a distribuição deles.

Na tabela [1.3](#), pode-se observar divisão dos elementos em fases químicas, importantes para se compreender alguns processos químicos que levam a filtração de elementos.

Há quatro processos principais que explicam diferenças na concentração dos elementos na Terra, a seguir explicitados:

- separação dos elementos por afinidade química;
- estrutura cristalina;
- propriedades atômicas e iônicas, como potencial iônico;
- atuação de organismos vivos.

Metais como os da família da platina, do paládio ou mesmo outros metais preciosos são raros na crosta terrestre, entretanto análise de ligas de ferro, de silicatos e de meteoros ferrosos possuem mais de 1000 vezes concentração de *Pt*, *Ir*, *Rh*, *Pd*, por exemplo. Ouro e germânio também são encontrados em grandes proporções. A afinidade química permite não só a explicação do processo de terrestre de concentração dos

Tabela 1.3: Classificação de Goldschmidt para os elementos químicos, (Goldschmidt, 1937).

Ferro, siderófilos	Sulfetos, calcófilos	Silicatos, litófilos	Gases, atmófilos	Organismos, biófilos
Fe, Ni, Co, P, As, C, Ru, Rh, Pd Os, Ir, Pt Au, Ge, Sn Mo, W, Nb Ta, Se, Te	O, S, Se Te, Fe, Cr, Ni, Co, Cu, Zn, Cd, Pb, Sn, Ge, Mo, As, Sb, Bi, Ag, Au, Hg, Cr	O, S, P H, Si, Ti Zr Hf, Th Sn, F, Cl Br, I, B Al, Ga, Sc Y, La, Ce Pd, Ru, Pt Ga, In, Tl Dy, Ho, Er Tm, Yb, Lu Li, Na, K, Rb, Cs, Be, Mg, Ca, Sr, Ba, Fe, V, Cr, Mn, Ni, Co, Nb, Ta, W, U, C	H, N, C O, Cl, Br, I, He, Ne, Ar, Kr, Xe Fe, Cu Pr, Nd, Sm Eu, Gd, Tb	C, H, O, N,P, S, Cl, I, B, Ca, Mg, K, Na, V, Mn,

elementos, como também uma análise indireta, pois medindo-se elementos correlatos é possível estimar probabilidades de se encontrar outros mais raros. Por exemplo, como o núcleo da Terra é majoritariamente de ferro e níquel, suponha que nela haja uma concentração de ouro semelhante à encontrada em alguns meteoros siderófilos, a saber, de 5 g/t . Como o núcleo interno tem da ordem de $\approx 1300 \text{ km}$ de raio e a densidade média estimada é de $\approx 13000 \text{ kg/m}^3$, haveria 10^{14} t de ouro! Desta forma, espera-se uma maior abundância de metais no interior terrestre, como *Pt*, *Au*, *Ir*, *Ge*.

Assim sendo, a hipótese de equilíbrio de divisão dos elementos em fases metálicas, semi-metálicas e silicatos é responsável por uma primeira e eficaz supressão dos elementos na crosta terrestre, conforme observa-se na tabela 1.3. Este processo de afinidade química ocorre devido à propriedades da estrutura das camadas eletrônicas dos átomos.

Outro processo que atua conjuntamente é o da estrutura cristalina, quando do res-

friamento dos elementos e de sua cristalização. Espera-se que íons de um determinado tipo possam substituir outro na rede cristalina caso tenham raio atômico semelhante. Assim, por exemplo, nos casos de silicato de magnésio encontra-se uma maior concentração de níquel, uma vez que o raio iônico é semelhante ($\approx 0,78\text{\AA}$). Também nota-se que entre elementos com raio iônico semelhantes, há maior abundância daqueles com maior valência, uma vez que produzem cristais com energia de ligação maiores.

Assim, por exemplo, no caso de minerais com zircônio e ítrio, há maior concentração de háfnio e hólmio.

Nos oceanos nota-se o favorecimento da concentração de terras raras se comparado com o alumínio, por exemplo. Isto se deve a processos de hidrólise que ocorrem naturalmente na água do mar que favorece justamente íons alcalinos. Também nota-se, por exemplo, uma maior adsorção de rubídio e cézio em relação ao potássio.

H																	He	<div></div> Litófilos
Li	Be											B	C	N	O	F	Ne	<div></div> Siderófilos
Na	Mg											Al	Si	P	S	Cl	Ar	<div></div> Calcófilos
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	<div></div> Atmófilos
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	<div></div> Sintéticos
Cs	Ba		Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn	
Fr	Ra		Rf	Db	Sg	Bh	Hs	Mt	Ds	Rg	Uub	Uut	Uuq	Uup	Uuh			
		La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu		
		Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Md	No	Lr		

Figura 1.4: Tabela periódica segundo a classificação de Goldschmidt. Foram destacadas apenas as afinidades principais dos elementos químicos.

Há também a formação de precipitados de hidróxidos como de silicatos e alumínio, que se acumulam no fundo de oceanos.

Dessa forma, substâncias com potencial químico baixo, como sódio, cálcio e magnésio, mantêm-se como solução iônica, aquelas com potencial iônico intermediário for-

mam precipitados. Por fim, as substâncias com elevado potencial iônico formam ânions contendo oxigênio e, em geral, são insolúveis. Por exemplo, selênio, bismuto, arsênio, chumbo e antimônio costumam ser suprimidos nestas soluções. Já molibdênio apresenta-se concentrado em sedimentos óxidos de compostos de manganês.

O último processo ocorre devido à atuação de organismos vivos, (Goldschmidt, 1937). Este processo atua principalmente em elementos leves que fazem parte de organismos vivos, como carbono, cálcio, lítio, potássio e sódio. Entretanto, devido à afinidade química do cézio com sódio e potássio, seres vivos, como plantas, podem absorver este elemento também. Tome o casos de vegetais: parte dos elementos absorvidos são eliminados na transpiração, outra parte através da decomposição de folha e troncos, o que altera a concentração dos elementos em uma região superficial da Terra.

Entretanto, este processo apenas explica pequenas inomogeneidades encontradas na crosta terrestre, uma vez que os processos inorgânicos são muito mais importantes na distribuição dos elementos terrestres do que os orgânicos.

1.6 Concentração dos Elementos no Sistema Solar e na Terra

Nesta seção serão apresentadas em tabelas as concentrações de elementos na Terra e no Sistema Solar (tabelas 1.6, 1.7 e 1.8). Na figura 1.5 pode-se notar as abundâncias dos elementos no sistema solar.

Pode-se notar que Li , Be e B são suprimidos. Entre O e Ca tem-se os elementos produzidos por captura de α . Pode-se notar também a maior abundância de Fe e Ni que são os últimos elementos produzidos majoritariamente por fusão, por terem o maior estado ligado, e, por isso, esperava-se que possuísem maior abundância.

Aparecem em maior concentração o Ba , Pt e Pb , que possuem um maior estado ligado. Também nota-se sistematicamente a maior abundância de elementos com Z

Figura 1.5: Abundância dos elementos no Sistema Solar, ([Wikimedia Commons, 2010](#)).

par, devido à estrutura nuclear. Por fim, nota-se uma maior abundância de *Th* e *U*. Se se corrigir para a meia-vida em relação à formação do sistema solar, nota-se que possuíam abundâncias muito próximos, conforme esperado.

Nas figuras 1.6 e 1.7 pode-se notar as abundâncias dos elementos no sistema solar. Já na tabela 1.8, a abundância na crosta terrestre. Comparando-se a abundância de tório e urânio na Terra com a estimada pela equação 1.8, devido ao calor produzido pela Terra, nota-se que ela apresenta uma concentração muito maior do que o esperado. Assim, é razoável que haja uma supressão no manto e núcleo de forma a compensar esta concentração elevada na extremidade. Também pode-se observar que o cálculo da estimativa de tório e urânio na Terra, é compatível com a abundância no sistema solar, corroborando as hipóteses previamente assumidas.

Z		CI Chondrites		Sun		Note	Recommended	
		A(X)	□	A(X)	□		A(X)	□
1	H	8.24	0.04	12.00		s	12.00	
2	He	1.31		10.925	0.02	s,t	10.925	0.02
3	Li	3.28	0.05	1.10	0.10	m	3.28	0.05
4	Be	1.32	0.03	1.38	0.09	m	1.32	0.03
5	B	2.81	0.04	2.70	0.17	m	2.81	0.04
6	C	7.41	0.04	8.39	0.04	s	8.39	0.04
7	N	6.28	0.06	7.86	0.12	s	7.86	0.12
8	O	8.42	0.04	8.73	0.07	s	8.73	0.07
9	F	4.44	0.06	4.56	0.30	m	4.44	0.06
10	Ne	-1.10		8.05	0.10	s,t	8.05	0.10
11	Na	6.29	0.02	6.30	0.03	a	6.29	0.04
12	Mg	7.55	0.01	7.54	0.06	a	7.54	0.06
13	Al	6.45	0.01	6.47	0.07	a	6.46	0.07
14	Si	7.53	0.01	7.52	0.06	m	7.53	0.06
15	P	5.45	0.04	5.46	0.04	a	5.45	0.05
16	S	7.17	0.02	7.14	0.01	a	7.16	0.02
17	Cl	5.25	0.06	5.50	0.30	m	5.25	0.06
18	Ar	-0.48		6.50	0.10	s,t	6.50	0.10
19	K	5.10	0.02	5.12	0.03	a	5.11	0.04
20	Ca	6.31	0.02	6.33	0.07	m	6.31	0.02
21	Sc	3.07	0.02	3.10	0.10	m	3.07	0.02
22	Ti	4.93	0.03	4.90	0.06	m	4.93	0.03
23	V	3.98	0.02	4.00	0.02	a	3.99	0.03
24	Cr	5.66	0.01	5.64	0.01	a	5.65	0.02
25	Mn	5.50	0.01	5.37	0.05	m	5.50	0.01
26	Fe	7.47	0.01	7.45	0.08	a	7.46	0.08
27	Co	4.89	0.01	4.92	0.08	a	4.90	0.08
28	Ni	6.22	0.01	6.23	0.04	a	6.22	0.04
29	Cu	4.27	0.04	4.21	0.04	m	4.27	0.04
30	Zn	4.65	0.04	4.62	0.15	m	4.65	0.04
31	Ga	3.10	0.02	2.88	0.10	m	3.10	0.02
32	Ge	3.60	0.04	3.58	0.05	a	3.59	0.06
33	As	2.32	0.04	0.00	0.00	m	2.32	0.04
34	Se	3.36	0.03	0.00	0.00	m	3.36	0.03
35	Br	2.56	0.06	0.00	0.00	m	2.56	0.06
36	Kr	-2.25		3.28	0.08	t	3.28	0.08
37	Rb	2.38	0.03	2.60	0.10	m	2.38	0.03

Figura 1.6: Abundância dos elementos no Sistema Solar por número atômico. ([Lodders, 2010](#))

Z		CI Chondrites		Sun		Note	Recommended	
		A(X)	□	A(X)	□		A(X)	□
38	Sr	2.90	0.03	2.92	0.05	m	2.90	0.03
39	Y	2.19	0.04	2.21	0.02	a	2.20	0.04
40	Zr	2.55	0.04	2.58	0.02	a	2.57	0.04
41	Nb	1.43	0.04	1.42	0.06	a	1.42	0.07
42	Mo	1.96	0.04	1.92	0.05	a	1.94	0.06
44	Ru	1.78	0.03	1.84	0.07	m	1.78	0.03
45	Rh	1.08	0.04	1.12	0.12	a	1.10	0.13
46	Pd	1.67	0.02	1.66	0.04	a	1.67	0.04
47	Ag	1.22	0.02	0.94	0.30	m	1.22	0.02
48	Cd	1.73	0.03	1.77	0.11	m	1.73	0.03
49	In	0.78	0.03	1.50	UL	m	0.78	0.03
50	Sn	2.09	0.06	2.00	0.30	m	2.09	0.06
51	Sb	1.03	0.06	1.00	0.30	m	1.03	0.06
52	Te	2.20	0.03	0.00	0.00	m	2.20	0.03
53	I	1.57	0.08	0.00	0.00	m	1.57	0.08
54	Xe	-1.93		2.27	0.08	t	2.27	0.08
55	Cs	1.10	0.02	0.00	0.00	m	1.10	0.02
56	Ba	2.20	0.03	2.17	0.07	a	2.18	0.07
57	La	1.19	0.02	1.14	0.03	m	1.19	0.02
58	Ce	1.60	0.02	1.61	0.06	a	1.60	0.06
59	Pr	0.78	0.03	0.76	0.04	a	0.77	0.05
60	Nd	1.47	0.02	1.45	0.05	m	1.47	0.02
62	Sm	0.96	0.02	1.00	0.05	m	0.96	0.02
63	Eu	0.53	0.02	0.52	0.04	a	0.53	0.04
64	Gd	1.07	0.02	1.11	0.05	a	1.09	0.06
65	Tb	0.34	0.03	0.28	0.10	m	0.34	0.03
66	Dy	1.15	0.02	1.13	0.06	a	1.14	0.06
67	Ho	0.49	0.03	0.51	0.10	m	0.49	0.03
68	Er	0.94	0.02	0.96	0.06	a	0.95	0.06
69	Tm	0.14	0.03	0.14	0.04	m	0.14	0.03
70	Yb	0.94	0.02	0.86	0.10	m	0.94	0.02
71	Lu	0.11	0.02	0.12	0.08	m	0.11	0.02
72	Hf	0.73	0.02	0.88	0.08	m	0.73	0.02
73	Ta	-0.14	0.04	0.00	0.00	m	-0.14	0.04
74	W	0.67	0.04	1.11	0.15	m	0.67	0.04
75	Re	0.28	0.04			m	0.28	0.04
76	Os	1.37	0.03	1.45	0.11	m	1.37	0.03
77	Ir	1.34	0.02	1.38	0.05	a	1.36	0.06
78	Pt	1.64	0.03	1.74	0.30	m	1.64	0.03
79	Au	0.82	0.04	1.01	0.18	m	0.82	0.04
80	Hg	1.19	0.08			m	1.19	0.08
81	Tl	0.79	0.03	0.95	0.20	m	0.79	0.03
82	Pb	2.06	0.03	2.00	0.06	m	2.06	0.03
83	Bi	0.67	0.04	0.00	0.00	m	0.67	0.04
90	Th	0.08	0.03	0.08	UL	m	0.08	0.03
92	U	-0.52	0.03	-0.47	UL	m	-0.52	0.03

Abundances on the astronomical scale with log N(H)=12.
Note: a = average of meteoritic and solar value; m=meteoritic value; t =
theoretical and/or indirectly determined.
UL: upper limit

Figura 1.7: Abundância dos elementos no Sistema Solar, $Z = 38$ até $Z = 80$. (Lodders, 2010)

Abundance			Abundance		
Element	Crust mg/kg	Sea mg/L	Element	Crust mg/kg	Sea mg/L
Ac	5.5×10^{-10}		N	1.9×10^1	5×10^{-1}
Ag	7.5×10^{-2}	4×10^{-5}	Na	2.36×10^4	1.08×10^4
Al	8.23×10^4	2×10^{-3}	Nb	2.0×10^1	1×10^{-5}
Ar	3.5	4.5×10^{-1}	Nd	4.15×10^1	2.8×10^{-6}
As	1.8	3.7×10^{-3}	Ne	5×10^{-3}	1.2×10^{-4}
Au	4×10^{-3}	4×10^{-6}	Ni	8.4×10^1	5.6×10^{-4}
B	1.0×10^1	4.44	O	4.61×10^5	8.57×10^5
Ba	4.25×10^2	1.3×10^{-2}	Os	1.5×10^{-3}	
Be	2.8	5.6×10^{-6}	P	1.05×10^3	6×10^{-2}
Bi	8.5×10^{-3}	2×10^{-5}	Pa	1.4×10^{-6}	5×10^{-11}
Br	2.4	6.73×10^1	Pb	1.4×10^1	3×10^{-5}
C	2.00×10^2	2.8×10^1	Pd	1.5×10^{-2}	
Ca	4.15×10^4	4.12×10^2	Po	2×10^{-10}	1.5×10^{-14}
Cd	1.5×10^{-1}	1.1×10^{-4}	Pr	9.2	6.4×10^{-7}
Ce	6.65×10^1	1.2×10^{-6}	Pt	5×10^{-3}	
Cl	1.45×10^2	1.94×10^4	Ra	9×10^{-7}	8.9×10^{-11}
Co	2.5×10^1	2×10^{-5}	Rb	9.0×10^1	1.2×10^{-1}
Cr	1.02×10^2	3×10^{-4}	Re	7×10^{-4}	4×10^{-6}
Cs	3	3×10^{-4}	Rh	1×10^{-3}	
Cu	6.0×10^1	2.5×10^{-4}	Rn	4×10^{-13}	6×10^{-16}
Dy	5.2	9.1×10^{-7}	Ru	1×10^{-3}	7×10^{-7}
Er	3.5	8.7×10^{-7}	S	3.50×10^2	9.05×10^2
Eu	2.0	1.3×10^{-7}	Sb	2×10^{-1}	2.4×10^{-4}
F	5.85×10^2	1.3	Sc	2.2×10^1	6×10^{-7}
Fe	5.63×10^4	2×10^{-3}	Se	5×10^{-2}	2×10^{-4}
Ga	1.9×10^1	3×10^{-5}	Si	2.82×10^5	2.2
Gd	6.2	7×10^{-7}	Sm	7.05	4.5×10^{-7}
Ge	1.5	5×10^{-5}	Sn	2.3	4×10^{-6}
H	1.40×10^3	1.08×10^5	Sr	3.70×10^2	7.9
He	8×10^{-3}	7×10^{-6}	Ta	2.0	2×10^{-6}
Hf	3.0	7×10^{-6}	Tb	1.2	1.4×10^{-7}
Hg	8.5×10^{-2}	3×10^{-5}	Te	1×10^{-3}	
Ho	1.3	2.2×10^{-7}	Th	9.6	1×10^{-6}
I	4.5×10^{-1}	6×10^{-2}	Ti	5.65×10^3	1×10^{-3}
In	2.5×10^{-1}	2×10^{-2}	Tl	8.5×10^{-1}	1.9×10^{-5}
Ir	1×10^{-3}		Tm	5.2×10^{-1}	1.7×10^{-7}
K	2.09×10^4	3.99×10^2	U	2.7	3.2×10^{-3}
Kr	1×10^{-4}	2.1×10^{-4}	V	1.20×10^2	2.5×10^{-3}
La	3.9×10^1	3.4×10^{-6}	W	1.25	1×10^{-4}
Li	2.0×10^1	1.8×10^{-1}	Xe	3×10^{-5}	5×10^{-5}
Lu	8×10^{-1}	1.5×10^{-7}	Y	3.3×10^1	1.3×10^{-5}
Mg	2.33×10^4	1.29×10^3	Yb	3.2	8.2×10^{-7}
Mn	9.50×10^2	2×10^{-4}	Zn	7.0×10^1	4.9×10^{-3}
Mo	1.2	1×10^{-2}	Zr	1.65×10^2	3×10^{-5}

Figura 1.8: Abundância dos elementos na crosta Terrestre. (Lide, 2009)

Capítulo 2

Espectroscopia Gama Simples, de Anti-Coincidência e Coincidência

Resumo

Neste capítulo discutir-se-á os procedimentos experimentais utilizados na análise de medidas de espectroscopia γ simples associadas à irradiação de nêutrons térmicos em rochas vulcânicas do Havaí e de Kilimanjaro. Também serão discutidas medidas em anti-coincidência associadas à irradiação de nêutrons térmicos em rochas vulcânicas do Equador, Islândia, Índia, Mt. Etna, Ruanda e Uganda.

Os resultados finais para a abundância de elementos em rochas vulcânicas serão apresentados nas seções [2.1.7](#) e [2.2](#).

2.1 Espectroscopia Gama Simples

2.1.1 Preparação de Alvos

Amostras de rochas vulcânicas coletadas no Havaí (dos vulcões Haleakala, Kauai, Kilauea, Mauna Loa e Princeville) e no Kilimanjaro foram preparadas conforme o proce-

dimento, (Renne, 2013, pers.comm.):

- as amostras foram lavadas com água por 5 min. em um *ultrasonic cleaner*;
- as amostras foram novamente lavadas por 8 min. na *ultrasonic cleaner* com uma solução 7% de *HF*;
- as amostras foram transformadas em pó com o auxílio de um almofariz;
- foram deixadas ao ar livre de um dia para outro a fim de secarem completamente;
- foram devidamente encapsuladas em um *eppendorf*, soldadas – para se evitar que a tampa abrisse durante a irradiação de nêutrons.

Foi-se tomado o devido cuidado de garantir a representatividade das amostras preparadas para irradiação de nêutrons térmicos. Como é bem sabido, rochas são compostas de diversos cristais, como partículas de vidro e feldspatos, que não são totalmente reduzidas a pó pelo processo mecânico utilizado. Como nêutrons térmicos são transparente à estrutura cristalina, procurou-se colocar no *eppendorf* particulados de tamanhos diferentes de forma a garantir a representatividade delas.

2.1.2 Arranjo Experimental

Na Figura 2.1 encontra-se um diagrama esquemático da eletrônica utilizada. O arranjo consiste em um pré-amplificador embutido no próprio detector, que converte a corrente total produzida pelo detector em um pulso de voltagem, um amplificador linear, que integra o sinal por um tempo ajustável, de forma que a altura do sinal integrado é proporcional a soma dos fotoelétrons incidentes no detector, amplificando o sinal, associado a um *multi channel analyzer* (MCA), que relaciona a altura do sinal, ou seja, a energia, com um *bin*, permitindo-se visualizar o espectro de contagens por canal, que é função da energia.

Figura 2.1: Diagrama da eletrônica de espectroscopia simples

Como interface de aquisição é utilizado o sistema MAESTRO, que permite a conexão entre o MCA e o computador, a análise de sinais de anti-coincidência ou coincidência (mais nas seções 2.2 e 2.3), calibração de energia e verificação do sinal de saída. Foram utilizados MCA de 8192 canais.

Foram utilizados tanto relógio de tempo vivo quanto real, conforme a conveniência da medida. Foram também observadas os tempos de mortos e corrigidos quando relevantes.

Foi-se utilizado um detector de cristal de germânio hiper-puro (HPGe), 2,1 kg, tipo *p*, 85% de eficiência relativa.

2.1.3 Descrição Experimental

Foram realizadas duas irradiações de nêutrons térmicos em McClellan, *University of California at Davis*, Sacramento, em 8 amostras (*eppendorf*, cerâmica padrão, Haleakala, Kauai, Mauna Loa, Princeville e duas de Kilimanjaro), uma curta, para se medir isótopos de meia-vida da ordem de minutos ou horas e outra longa, visando a determinação de isótopos com meia-vida superior a dias.

A seguir encontram-se sistematizadas as informações sobre as irradiações realizadas:

- **irradiações curtas:** as amostras foram irradiadas por 10 s a um fluxo de $8,26(30) \cdot 10^{12} \text{ n}/(\text{cm}^2 \cdot \text{s})$. Foi utilizado o sistema pneumático de coelho, através de um sistema pressurizado de dióxido de carbono, em que, basicamente, o *eppendorf* é transferido rapidamente do laboratório até a posição de irradiação. Este método permite a colocação das amostras em posição de fluxo mais intenso e a retirada quase imediata após o término da irradiação, permitindo-se a medição de meias-

vidas de minutos ou horas. Como deve-se utilizar *ependorf* de polietileno neste sistema, cujo limite máximo de irradiação é de 5 *horas*, para que não ocorra o superaquecimento do plástico, as irradiações longas não podem ser feitas com nele. Por questões de segurança, o setor de proteção radiológica apenas liberou as amostras $\approx 30 \text{ min.}$ após a irradiação; o que impediu a mensuração adequada de isótopos de meia-vida curta ($\approx \text{min.}$) e de baixa estatística;

- **irradiações longas:** as amostras foram irradiadas por 10 *h* a um fluxo de $4,6(6) \cdot 10^{11} \text{ n/(cm}^2 \cdot \text{s)}$. Nestas irradiações não foram utilizadas o sistema de coelho nem o *ependorf* de polietileno, uma vez que o calor produzido pelos decaimentos seria suficiente para derretê-la. Por questões de segurança o setor de proteção radiológica apenas liberou as amostras $\approx 7 \text{ dias}$ após a irradiação, o que impediu a mensuração de isótopos de meia-vida da ordem de dias e de baixa estatística.

O fluxo foi calculado através da cerâmica padrão, cuja abundância de elementos era conhecida, como será detalhada mais adiante (eqs. 2.2, 2.7).

Para meias-vidas curtas as amostras foram colocadas a 10 *cm* do detector e medidas sucessivamente por tempos de aproximadamente 10 *min.*, de forma a acompanhar a curva de decaimento, o que auxiliou a determinar os isótopos.

Para meias-vidas longas foram realizadas inicialmente medidas com as amostras encostadas no detector, por tempos que variavam de 20 *min.* a 2 *dias*, durante 3 meses. Em seguida elas foram colocadas a 12 *cm* do detector e medidas novamente em tempos de medição de dias. Na primeira parte as amostras estavam encostadas no detector pois assim aumenta-se a estatística de contagem para se medir elementos com meia-vida da ordem de dias. Em contrapartida aumenta-se também efeitos de detecção como somas. Por isso, na segunda parte preferiu-se aumentar o tempo de medição e afastar a amostra do detector.

2.1.4 Calibração

Para a calibração de energia e de eficiência foram utilizadas como fontes os seguintes isótopos: ^{22}Na ($T_{1/2} = 2,6\text{ a}$), ^{54}Mn ($T_{1/2} = 312\text{ d}$), ^{137}Cs ($T_{1/2} = 31\text{ a}$), ^{57}Co ($T_{1/2} = 272\text{ d}$), ^{60}Co ($T_{1/2} = 1925\text{ d}$), ^{88}Y ($T_{1/2} = 107\text{ d}$), ^{133}Ba ($T_{1/2} = 356\text{ d}$), ^{152}Eu ($T_{1/2} = 13,7\text{ a}$) e ^{228}Th ($T_{1/2} = 1,9\text{ a}$).

Calibração de Energia

Para a calibração de energia utilizou-se a própria interface de aquisição (*ORTEC MASTERO*), de forma a se poder analisar os resultados enquanto se media. Devido ao carácter linear dos detectores de germânio utilizados, supôs-se uma função também linear ($\text{energia}(\text{posição}) \equiv a \cdot \text{posicao} + b$, onde a e b são os parâmetros a serem determinados).

Na tabela 2.1 pode ser conferido os principais gamas utilizados na calibração de energia.

Calibração de Eficiência

A fim de quantificar a abundância dos elementos é necessário calcular a curva de eficiência. Como não se está interessado em medidas de correlação angular ou seções de choque diferenciais, o método mais simples é se determinar a eficiência total, que incorpora a eficiência intrínseca mais a geométrica, uma vez que o detector não terá $4\pi\text{ sr}$ em relação à amostra. Outra vantagem é que a amostra não é puntiforme, de forma que usando fontes de calibração com geometria parecidas, permite-se que se elimine algumas covariâncias do cálculo de concentração dos elementos nas amostras.

- **eficiência geométrica:** é a razão entre os fótons que atingem o contorno do detector e os emitidos pela fonte. Supondo-se a emissão de fótons isotrópica, depende simplesmente da integral de ângulo sólido em torno da superfície do

detector;

- **eficiência intrínseca:** é a razão entre a quantidade de fótons que atinge o detector e que realmente são detectados. Ao atingir o detector os fótons podem ser espalhados, refletidos pela janela do detector ou não depositar energia o suficiente para serem detectados. Depende das características do detector como densidade e tamanho do detector, da energia e da eletrônica;
- **eficiência total:** é a multiplicação das eficiências geométrica e intrínseca. Em última análise é a razão entre o número de fótons emitidos pela fonte e efetivamente detectados.

A eficiência pode ser expressa pela seguinte equação:

$$\varepsilon = \frac{C}{I_\gamma \mathcal{A}} \quad (2.1)$$

onde C é o número de contagem do fotopico correspondente, I_γ é a intensidade da transição γ e $\mathcal{A}$ é a atividade da fonte durante o tempo de medida Δt , dado por:

$$\mathcal{A} = \int_{t_i}^{t_f=t_i+\Delta t} \mathcal{A}_0 e^{-\lambda t} dt \approx \mathcal{A}_0 e^{-\lambda t_i} \Delta t \quad \Delta t \lambda \ll 1 \quad (2.2)$$

onde $\mathcal{A}_0$ é atividade da fonte previamente determinada, t_i é o tempo transcorrido entre a determinação de $\mathcal{A}_0$ e a nova medida com a fonte de calibração e a exponencial é o operador temporal que leva a atividade da fonte de $\mathcal{A}$ até $\mathcal{A}_0$. Como geralmente se utiliza fontes de calibração com meia-vida longa e medida curtas das fontes de calibração, pode-se utilizar a aproximação de supor desprezível o decaimento entre o início da medição e seu término.

Foram então determinadas eficiências, utilizando-se o seguinte ajuste:

$$\varepsilon = \frac{1}{E_\gamma} \sum_{\substack{i=0 \\ i \neq 4,6}}^7 p_i \ln^i(E_\gamma) \quad (2.3)$$

onde p_i são os parâmetros obtidos através do ajuste. Como esta função serve tanto para a parte de baixas energias como para de alta energias, o ajuste tem forte dependência de medições nos extremos da região de interesse.

Por fim, vale uma observação: o ^{228}Th produz diversos γ de alta e baixa energias emitido por outros isótopos da cadeia de decaimento dele. O mais interessante deles é o 2614 keV que produz um γ no extremo da região de mais alta energia de interesse (uma vez que o ganho fora configurado para ir até, aproximadamente, 3 MeV). Este γ provém do seguinte decaimento, $^{228}\text{Th} \rightarrow ^{208}\text{Tl} + \gamma$, ($T_{1/2} = 1,9 \text{ a}$), onde foi considerado que após $25,7 \text{ d}$ o tório atinge o equilíbrio secular.

Figura 2.2: Curva de eficiência com os parâmetros adequados para o caso em que a amostra foi colocada a 10 cm do detector.

Figura 2.3: Curva de eficiência com os parâmetros adequados para o caso em que a amostra foi colocada encostada no detector.

Figura 2.4: Curva de eficiência com os parâmetros adequados para o caso em que a amostra foi colocada a 12 cm do detector.

Tabela 2.1: Principais gamas utilizados para calibração de energia. Note que no caso do ^{228}Th , os gamas fazem parte da cadeia de decaimento. Informações retiradas de (NNDC, 2014).

Fonte radioativa	E_γ [keV] (I_γ)[%]
^{22}Na	1274,5 (99,94)
^{57}Co	122,1 (85,60)
	136,5 (10,68)
^{60}Co	1173,2 (99,85)
	1332,5 (99,98)
^{133}Ba	79,6 (2,65)
	81,0 (32,90)
	276,4 (7,16)
	302,9 (18,34)
	356,0 (62,05)
	383,8 (8,94)
^{137}Cs	661,7 (85,10)
^{152}Eu	121,8 (28,67)
	244,7 (7,61)
	344,3 (26,60)
	411,1 (2,24)
	444,0 (2,83)
	778,9 (12,96)
	867,4 (4,26)
	964,1 (14,65)
	1085,9 (10,24)
	1089,7 (1,73)
	1112,1 (13,69)
	1212,9 (1,43)
	1299,1 (1,63)
	1408,0 (21,07)
^{228}Th	238,6 (43,60)
	277,4 (6,60)
	300,1 (3,30)
	583,2 (85)
	727,3 (6,67)
	860,6 (12,50)
	1620,5 (1,47)
	2614,5 (99,75)

2.1.5 Cerâmica Padrão

Outro método para se obter a abundância de elementos sem ter que necessariamente obter a eficiência é através da utilização de um cerâmica padrão contendo certos elementos de abundância determinada. Supondo-se que a cerâmica padrão possua matriz e geometria semelhantes às amostras e que foram medidas nas mesmas condições experimentais que elas, tem-se que a abundância será dada por:

$$\frac{q_{amostr.}}{q_{cer. padrao}} = \frac{C_{amostr.}}{C_{cer. padrao} m} \cdot \frac{t_{cer. padrao}}{t_{amostr.}} \cdot e^{\lambda \Delta t} \quad (2.4)$$

onde $q_{amostr.}$ é a abundância de certo elemento presente na amostra, $q_{cer. padrão}$ é a abundância de certo elemento químico presente em 1 g de material, m a massa em gramas de cerâmica padrão que foi irradiada, $t_{amostr.}$, o tempo de medição da amostra, $t_{cer. padrao}$, o tempo de medição da cerâmica padrão e Δt é a diferença de tempo entre quando se começou a medir a amostra e a cerâmica padrão ($t_{i_{amostra}} - t_{i_{cer. padrao}}$). Para meias-vidas longas e Δt pequeno, $\lambda \Delta t \ll 1$, este factor correctivo $e^{\lambda \Delta t}$ usualmente é da ordem de 1.

A cerâmica padrão utilizada foi produzida por [Perlman and Asaro 1969](#) para fins de arqueometria com nêutrons térmicos, tendo como base uma cerâmica natural contendo um número de isótopos traço maior que o habitual e com baixa concentração de manganês, sódio e ferro. A utilização de uma cerâmica natural resolveu a dificuldade de se produzir uma cerâmica completamente sintética e, ao mesmo tempo, homogênea.

Após isso, a cerâmica foi molhada, transformada em pó, passada por um peneira de 600 *mesh*. Em seguida foi misturada a uma solução aquosa contendo cobalto, níquel, bromo e arsênico, e novamente seca e transformada em pó. A medida de concentração de elementos foi realizada através de análise por irradiação de nêutrons térmicos (NAA) e por processos químicos. Para se determinar a concentração final dos elementos por NAA, subtraiu-se do total de contagens de determinado pico to-

das as possíveis interferências que produzissem um γ de mesma energia. Por exemplo, no caso de $^{26}\text{Mg}(n,\gamma)^{27}\text{Mg}$; 9,5 min.; 1013 keV, tomou-se o cuidado de separar o $^{83\text{m}}\text{Se}$; 70 s; ~ 1010 keV e ^{101}Mo ; 14,6 min.; ~ 1020 keV. Na tabela 2.2 pode-se observar a concentração de elementos presentes na cerâmica padrão por grama de material.

Uma vez que as amostras e a cerâmica padrão foram submetidas à mesma condição de fluxo de nêutrons térmicos, a abundância de elementos depende fundamentalmente apenas da razão entre contagens das amostras e da cerâmica, eliminando-se uma das maiores fontes de erro no cálculo, a saber, o fluxo. Se se submetesse, a amostra e a cerâmica padrão, a condições de fluxos diferentes, ou se se determinasse a concentração dos elementos de maneira direta, dever-se-ia adicionar um fator dependente do fluxo.

Além disso, como é suposto que amostras e cerâmica padrão possuam matrizes semelhantes, os efeitos somas devem assemelhar-se, de forma que a razão entre contagens corrigidas pelo efeito soma é igual a simples razão entre contagens. Desta forma, a utilização da cerâmica padrão para se quantificar a abundâncias das amostras, quando possível, permite que se elimine inúmeras incertezas e covariâncias envolvidas no processo usual de determinação de incertezas.

2.1.6 Efeitos de Detecção

Existem inúmeros efeitos de detecção que atuam no processo experimental de espectroscopia gama e que interferem na área do pico (por conseguinte, no resultado da abundância de elementos). A utilização de uma cerâmica padrão, 2.2, é o melhor método para transpor estes efeitos, pois, assumindo que estes efeitos ocorram na mesma proporção na amostra e na cerâmica padrão, a razão entre as contagens será independente de efeitos de detecção. Como rochas vulcânicas possuem uma matriz vasta e complexa, a completa quantificação destes efeitos torna-se praticamente impossível e simulações só são possíveis após o conhecimento prévio de abundâncias em algumas

rochas vulcânicas.

Escape

Para fótons com energia $E_\gamma \geq 1022 \text{ keV}$ é possível a criação de pares elétron-pósitron no cristal do detector. Caso a energia dos dois fótons de 511 keV provenientes da aniquilação deste par sejam totalmente absorvidos veremos um foto-pico com a energia total E_γ . Caso ocorra a absorção de apenas um dos fótons com o cristal, teremos um foto-pico de energia $E_\gamma - m_0c^2$, m_0c^2 a energia do elétron, denominado escape simples. Caso nenhum deles for absorvido com o cristal, a energia do foto-pico será de $E_\gamma - 2m_0c^2$.

Como acima de 1022 até 3000 keV, o limite do ganho utilizado, a seção de choque do processo é crescente com a energia, picos com mais energia terão uma probabilidade maior de sofrerem efeitos de escape.

Um fator importante para a diferenciação de picos de escape dos demais é o fato da incerteza associada ao pico ser maior que dos outros picos, uma vez que o processo de aniquilação do pósitron não ocorre necessariamente com ele em repouso.

Empilhamento

Quando dois fótons de núcleos distintos atingem o detector em um tempo inferior à resolução da eletrônica de detecção ocorrerá uma sobreposição dos pulsos, gerando um pico de empilhamento com energia equivalente a soma das energias dos fótons. No nosso caso, como as amostras possuem uma matriz complexa, a determinação total das áreas de picos, i.e., a correção da área do pico pelo número de empilhamentos que ocorreram é inviável.

Obviamente, quanto mais próximo do detector, maior a ocorrência deste efeito, uma vez que o ângulo sólido é maior, ou seja, a probabilidade de que dois fótons arbitrários atinjam o detector também o é.

Efeito Soma

Quando dois fótons emitidos pelo mesmo núcleo interagem com o detector, temos o efeito soma. O tempo entre a emissão do primeiro e do segundo fóton é da mesma ordem de grandeza do estado intermediário, normalmente inferior à resolução da eletrônica do detector, produzindo um pico como a soma das energias dos dois fótons. A área do pico soma será dada por:

$$A_{soma} = N \cdot I_1 \cdot \varepsilon(E_1) \cdot Y_{1,2} \cdot W_{1,2} \cdot \varepsilon(E_2) \quad (2.5)$$

onde $Y_{i,j}$ é a razão de ramificação relativa, ou seja, $P(\gamma_2|\gamma_1)$, onde $P(\gamma_2)$ é a probabilidade do γ_2 ser emitido, e $W_{i,j}$ é a função de correlação angular entre os dois gamas do pico soma, $\varepsilon(E_i)$ é a eficiência calculada para a energia E_i , I_1 é a intensidade do gama no estado mais excitado.

A equação 2.8 permite determinar a área do pico soma, entretanto esta análise, conforme discutido para o caso de empilhamento, é inviável devido à matriz complexa da amostra. Além disso, a probabilidade de ocorrência de efeito soma é muito maior que a de empilhamento se as amostras estão encostadas no detector. Contudo, este efeito pode ser contornado em muitos casos com a utilização da cerâmica padrão 2.2, pois a taxa de ocorrência de efeito soma nela e nas amostras são proporcionais.

Efeito Compton

O efeito Compton ocorre quando um fóton de energia E é espalhado por um elétron. A energia do fóton espalhado é dada por

$$\frac{1}{E} = \frac{(1 - \cos \theta)}{m_e c^2} + \frac{1}{E_0} \quad (2.6)$$

onde E_0 é a energia inicial do fóton e θ , o ângulo de espalhamento do fóton. Pode-se notar que o máximo da energia do fóton espalhado ocorre para $\theta = \pi$ e o mínimo para

$\theta = 0$.

Quando o fóton interage com o detector ele pode sofrer inúmeros espalhamentos. Em geral, o elétron livre produzido tem sua energia absorvida pelo detector, entretanto o fóton pode escapar, de forma que sua energia não será depositada nele, produzindo um espectro Compton contínuo que vai de $\Phi =$

Figura 2.5: Espectro de Kilimanjaro 1 obtido 30,7 *min.* após a irradiação e com 175 *s* de tempo vivo. Pode-se notar o contínuo Compton provocado pelo pico de 834 *keV* do ^{54}Mn ; 196 *keV* e 638 *keV* são o mínimo e o máximo da energia do fóton Compton, respectivamente.

0° (ângulo de espalhamento do elétron, energia máxima do elétron) até $\Phi = 180^\circ$. A seção de choque pode ser estimada através da fórmula de Klein-Nishima. Através desta fórmula, observa-se justamente que a seção de choque é maior para $\Phi = 0^\circ$ e $\Phi = 180^\circ$. A intensidade relativa entre os ângulos de espalhamento pode ser estimada pela razão da seção de choque diferencial, que depende apenas do ângulo de espalhamento, permitindo-se confirmar se as bordas Compton realmente são devidas a este efeito, pois se as energias corresponderem ao fóton Compton de algum gama e as intensidades relativas também, pode-se distinguir com segurança este efeito. Na figura 2.5, pode-se notar o espectro Compton provocado pelo pico de 834 *keV* do ^{54}Mn . O espectro Compton, por contribuir fortemente para o fundo intrínseco da amostra, pode dificultar medições de picos com baixa estatística.

2.1.7 Obtenção de Abundância

Como será visto em 2.1.8, nem todos os elementos identificados nas amostras de rochas vulcânicas estão também presentes na cerâmica padrão, de forma que é necessário proceder ao método usual de quantificação, nestes casos. Das equações 1.2 e 2.1, tem-se que:

$$m = \frac{(C - \sum_i C_i) M \lambda e^{-\lambda t_0}}{0,602 I \varepsilon \Phi \sigma (1 - e^{-\lambda t_{irr.}}) (1 - e^{-\lambda \Delta t})} \underbrace{\left(\frac{\Delta t}{\Delta t_{vivo}} \right)^{-1}}_{\text{correção devido ao tempo morto}} \quad (2.7)$$

onde t_0 é o tempo transcorrido entre a criação da fonte e o início da medição, I , a intensidade da linha gama medida, Φ , o fluxo de nêutrons, σ , a seção de choque, $t_{irr.}$ o tempo de irradiação, Δt , o tempo real de medição, Δt_{vivo} é o tempo vivo de medição, M é a massa molar do isótopo e m é a quantidade, em gramas, do isótopo.

A equação 2.7 foi generalizada, pois em alguns casos o mesmo pico origina-se devido ao decaimento de isótopos diferentes, de forma que é necessário subtrair estas interferências. Através desta equação, 2.7, é possível quantificar a abundância do isótopo.

Só é possível determinar a contribuição de cada interferência se cada uma emitir outros fótons que possam ser identificados isoladamente. Supondo que uma determinada interferência emita mais dois outros gamas, neste caso utiliza-se os outros picos para se determinar a quantidade em gramas do isótopo e, utilizando novamente 2.7, determina-se qual a contribuição em contagens no pico que é a soma de diferentes interferências. Assim, C é o total de contagens no pico e $\sum_i C_i$ é a subtração destas interferências. A razão $\Delta t / \Delta t_{vivo}$ é uma correção adicionada devido ao tempo morto, o tempo em que o sistema de aquisição está ocupado processando o sinal e não mede possíveis gamas que atinjam o detector.

Análise das covariâncias envolvidas nesta equação será desenvolvida em A.

Tabela 2.2: Concentração de elementos presentes na cerâmica padrão. Resultados em g/g . Tabela retirada de ([Perlman and Asaro, 1969](#); [Smith et al., 1996](#)).

	Abundância (em g/g)
Al	$1,59(20) \cdot 10^{-1}$
As	$3,08(22) \cdot 10^{-5}$
Au	$2(5) \cdot 10^{-8}$
Ba	$7,1(3) \cdot 10^{-4}$
Br	$2,3(9) \cdot 10^{-6}$
Ca	$2,0(-) \cdot 10^{-4}$
Ce	$8,03(39) \cdot 10^{-5}$
Cl	$1,30(-) \cdot 10^{-4}$
Co	$1,406(15) \cdot 10^{-5}$
Cr	$1,15(4) \cdot 10^{-4}$
Cs	$8,3(5) \cdot 10^{-5}$
Cu	$6,0(8) \cdot 10^{-5}$
Dy	$4,79(19) \cdot 10^{-6}$
Eu	$1,45(3) \cdot 10^{-6}$
Fe	$1,017(12) \cdot 10^{-2}$
Ga	$4,4(5) \cdot 10^{-5}$
Hf	$6,2(4) \cdot 10^{-6}$
K	$1,45(4) \cdot 10^{-2}$
La	$4,49(5) \cdot 10^{-5}$
Lu	$4,0(4) \cdot 10^{-7}$
Mg	$5,0(20) \cdot 10^{-3}$
Mn	$4,09(5) \cdot 10^{-5}$
Mo	$9,8(13) \cdot 10^{-6}$
Na	$2,61(4) \cdot 10^{-3}$
Nd	$3,5(4) \cdot 10^{-5}$
Ni	$2,79(20) \cdot 10^{-4}$
Rb	$7,0(6) \cdot 10^{-5}$
Sb	$1,7(5) \cdot 10^{-6}$
Sc	$2,06(3) \cdot 10^{-5}$
Si	$6,04(3) \cdot 10^{-3}$
Sm	$5,78(12) \cdot 10^{-6}$
Sr	$1,45(22) \cdot 10^{-4}$
Ta	$1,55(4) \cdot 10^{-6}$
Th	$1,40(4) \cdot 10^{-5}$
Ti	$7,8(3) \cdot 10^{-3}$
U	$4,8(4) \cdot 10^{-6}$
Yb	$2,8(4) \cdot 10^{-6}$
W	$1,03(2) \cdot 10^{-5}$
Zn	$1,26(8) \cdot 10^{-4}$

2.1.8 Resultados

Nesta seção serão discutidos detalhadamente alguns dos resultados obtidos. Serão mostrados espectros adquiridos, bem como regiões do espectro amplificadas, caso seja de especial interesse. Ao final (figuras 2.3 e 2.4) encontra-se a tabela com os resultados devidamente quantificados.

2.1.9 Irradiações Curtas

Nos gráficos 2.18 e 2.19 pode-se visualizar espectros de irradiações curtas para Kilimanjaro 1. Já no gráfico 2.20, encontra-se um espectro do *eppendorf* irradiado, mostrando que a taxa de contagens do fundo mais a ativação do *eppendorf* são desprezíveis.

A seguir encontram-se detalhados alguns resultados mais delicados e, por isso, comentados. É importante notar que, devido à atividade significativa do ^{28}Al e do ^{24}Na , para citar os principais, aliado à espera de 30 *min.* após as irradiações e medições subsequentes por até 1 *h* após as irradiações, isótopos como o ^{65}Ni ($T_{1/2} = 2,5$ *h*, $E_\gamma = 1481,8$ *keV*, $I_\gamma = 23,6\%$), ^{66}Cu ($T_{1/2} = 5,1$ *min.*, $E_\gamma = 1039,2$ *keV*, $I_\gamma = 9,2\%$), ^{52}V ($T_{1/2} = 3,7$ *min.*, $E_\gamma = 1434,1$ *keV*, $I_\gamma = 100\%$), ^{83}Se ($T_{1/2} = 22,3$ *min.*, $E_\gamma = 2290,3$ *keV*, $I_\gamma = 9,3\%$, $E_\gamma = 1894,9$ *keV*, $I_\gamma = 7,8\%$), entre outros (^{37}S , ^{47}Ti , ^{71}Zn , ^{80}Br , ^{75}Ge , ^{101}Mo), não puderam ser identificados conclusivamente, já que o fundo intrínseco nas amostras aliado a baixa estatística destes impediu sua medição.

U

Para as medidas de amostras irradiadas por 10 *s*, um caso em especial é o ^{239}U . Ele possui apenas um gama intenso ($\gamma = 74,7$ *keV*, $I = 49,2\%$, $T_{1/2} = 23,45$ *min.*), na região de raios X, o que torna a medição extremamente delicada, pois há um número grande de picos nesta região. Medidas sucessivas confirmaram que o número de contagens do suposto pico do ^{239}U é compatível com um decaimento de 23,45 *min.*, confirmando tratar-se de um gama deste isótopo. Supondo que o pico foi produzido apenas pelo

^{239}U , calculou-se a abundância de urânio em cada medida subsequente e verificou-se se eram compatíveis. Esta abordagem é totalmente equivalente a calcular a atividade do pico após cada medida e ajustar a curva de decaimento. Na figura 2.6 pode-se verificar estes picos conjuntamente, para o caso de Kilimanjaro 1.

Figura 2.6: Pico de 74,7 keV do ^{239}U para diferentes medidas da amostra Kilimanjaro 1. Todas elas foram realizadas com tempo real de 300 s. O decaimento do pico mostrou-se compatível com a meia-vida de 23,5 min. do ^{239}U .

2.1.10 Irradiações Longas

Nos gráficos 2.21 e 2.28 encontram-se espectros totais para as amostras de Kilimanjaro 2 e Kilauea, respectivamente. Já nos gráficos 2.22 à 2.27 encontram-se o de Kilimanjaro 2 em intervalos de 500 keV.

Também foram comentados alguns pontos delicados na determinação de certos isótopos, devido à interferências e outros processos que dificultaram estas medidas. Existem alguns isótopos que, devido à atividade radioativa e gamas intensos, acabam interferindo significativamente no fundo intrínseco da amostra. São casos do ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{182}Ta e ^{131}Ba . Na figura 2.17, pode-se notar parte do esquema de níveis do ^{152}Eu , em que é possível notar o grande número de fótons intensos emitidos, muitos em coinci-

dência. Além de efeitos como *Bremsstrahlung* e efeito Compton, há inúmeros gamas daqueles provocando picos soma na região de mais alta energia. Desta maneira, estes isótopos acabam dificultando a determinação de outros. Também há os casos em que outros gamas tem a mesma energia dos do ^{152}Eu , por exemplo, e assim é necessário proceder à subtração da contribuição do európio à fim de quantificá-los, caso do ^{95}Zr .

As

Pôde ser medido através do ^{76}As , ($T_{1/2} = 1,1\text{ d}$), cujo gama mais intenso $E_\gamma = 559,1\text{ keV}$ possui intensidade de $I_\gamma = 45,0\%$. Entretanto, conforme notado no gráfico 2.7, há inúmeros picos próximos e até mais intensos o que torna o ajuste altamente dependente das condições iniciais para o ajuste dos parâmetros.

Além disso, o pico apresenta-se com tão pouca intensidade que apenas nas amostras de Kilimanjaro (1 e 2) pôde-se determinar quantitativamente. Nas demais há indicações sólidas, mas não suficientes, para quantificá-lo, dentro do conceito de limite crítico (3σ).

La

Há duas formas possíveis de produção do ^{140}La : ou por captura de nêutron térmico pelo ^{139}La ou por fissão induzida por nêutrons térmicos do ^{235}U . No caso da fissão induzida ela foi comprovada através da medição do pico de $537,3\text{ keV}$ do ^{140}Ba ($T_{1/2} = 12,8\text{ d}$), conforme pode ser visto no gráfico 2.23, e do acompanhamento de meia-vida.

Quantificando a abundância de urânio, através do ^{140}Ba , pôde-se separar qual o número de contagens do ^{140}La é produzido pela fissão e qual por captura de nêutrons térmicos. Esta interferência é de grande importância, pois medidas realizadas um mês após a irradiação de nêutrons ainda apresentavam nitidamente o pico do ^{140}La . Como a meia-vida é de $T_{1/2} = 1,7\text{ d}$ isso só é possível se alimentado pelo ^{140}Ba .

Como o lantânio também está presente na cerâmica padrão, uma vez subtraída a interferência do pico (apenas nos casos em que o ^{140}Ba foi identificado, caso contrário

Figura 2.7: Pico de 559 keV (canal 1483) do ^{76}As para medidas de Kilimanjaro 1, 15 dias após a irradiação e espectro medido por 33,0 h

foi considerado desprezível), utilizou-se o método de quantificação relativa ao número de contagens naquela. Essa interferência corresponde à $\approx 2\%$ do pico.

No gráfico 2.8 pode-se visualizar o ajuste do pico realizado pelo IDEFIX (Gouffon, 1987).

Ce

Pôde-se quantificar a abundância do cério apenas através do ^{141}Ce ($T_{1/2} = 32,5\text{ d}$), que emite apenas um gama intenso, o de 145,4 keV, cuja intensidade é de $I = 48,3\%$.

O cério encontra-se em uma região cuja determinação é mais delicada, uma vez que para baixas energias a quantidade de picos é enorme, conforme notado no gráfico 2.22, o que pode necessitar de boas escolhas de parâmetros iniciais para os ajustes dos picos,

Figura 2.8: Pico de 2522 keV do ^{140}La (canal 6695) para medidas de Kilimanjaro 1, 1 mês após a irradiação e espectro medido por 33,0 h.

possíveis através do IDEFIX, além de normalmente possuir inúmeras interferências. Entretanto, acompanhamento de meia-vida, comprovou que o cério não possui nenhuma interferência significativa, como observado nas figuras 2.9 e 2.10. A fissão do ^{235}U também pode produzir ^{141}Ce , porém não foi significativo.

O ^{140}Ce possui uma seção de choque para nêutrons térmicos de $\sigma = 0,58\text{ b}$, mas abundância isotópica de $\mathcal{I} = 0,88$, de forma que possui uma seção de choque efetiva de $\Phi = 0,51\text{ b}$. Já o ^{138}Ce possui uma seção de choque efetiva de $\Phi = 1,0 \cdot 0,00251 = 0,00251\text{ b}$, o que explica o fato de não ter sido medido o ^{139}Ce ($T_{1/2} = 137,6\text{ d}$), que possui um gama intenso, de $166,0\text{ keV}$ ($I_\gamma = 80\%$). Medidas realizadas alguns meses após a irradiação poderiam revelar este gama. Já o ^{142}Ce possui seção de choque efetiva de $\Phi = 0,97 \cdot 0,11 = 0,11\text{ b}$, além do ^{143}Ce possuir meia-vida de $T_{1/2} = 33\text{ h}$. Como só foram realizadas medições até 1 h após a irradiação curta e 7 dias após a longa, as condições experimentais não favoreceram a medição de isótopos com meia-vida de horas.

Figura 2.9: Pico de 145,4 keV do ^{141}Ce para diferentes medidas da amostra Mauna Loa. Pode-se notar uma pequena variação de ganho da primeira medição realizada 14 dias após a irradiação em relação às outras. Isto não altera a análise da medida, uma vez que foi feito a calibração de energia.

Lu

No caso do lutécio, pôde-se identificá-lo através do ^{177}Lu ($T_{1/2} = 6,6\text{ d}$).

Neste caso há a interferência do ^{177}Yb , cuja meia-vida é $T_{1/2} = 1,9\text{ h}$. Como só foram realizadas medições uma semana após as irradiações todo o itérbio já decaíra para o lutécio, de forma para subtrair esta interferência basta quantificar quanto de ^{177}Yb foi produzido (através do ^{169}Yb). Esta interferência no entanto é totalmente desprezível, uma vez que ela é da ordem de $\approx 1\%$.

Na figura 2.11 é possível notar a atividade do ^{177}Lu dividida pela intensidade do pico de 208,4 keV.

Th

No caso do tório, não pôde-se identificar o gama proveniente do decaimento do ^{233}Th , uma vez que a meia-vida é de 21,8 min. e não possui gamas com intensidade superior à 1,5% (com exceção do gamma de 7,2 keV que não pode ser identificado com o arranjo experimental utilizado nesta tese).

Entretanto, o ^{233}Th decai para o ^{233}Pa , que possui uma grande quantidade de gamas identificáveis e uma meia-vida de $T_{1/2} = 27,0\text{ d}$, o que tornou sua identificação possível.

Figura 2.10: Curva de decaimento para o pico de 145,4 keV do ^{141}Ce , para a amostra Mauna Loa.

Na figura 2.13, pode-se notar o esquema de níveis do ^{233}Pa , com os gamas mais intensos. Devido à grande quantidade de gamas intensos, a medição do tório não envolve grande dificuldade.

Zn

O ^{65}Zn ($T_{1/2} = 243,9\text{ d}$) possui apenas um gama intenso, de 1115,5 keV. Apesar da meia-vida longa, o que dificulta sua medição apenas um mês após a irradiação, a abundância dele torna isso possível, conforme concluído pelo acompanhamento de meia-vida.

Deve-se prestar atenção para picos muito mais intensos na proximidade do 1115 keV, como o 1112 keV, do ^{152}Eu , e o 1121 keV, do ^{182}Ta e do ^{46}Sc , que além de mais de 10 vezes mais intenso, possui uma *FWHM* maior. Estes picos nas proximidades

Figura 2.11: Atividade do ^{177}Lu para o gama de 208,4 keV para diferentes medidas da amostra Mauna Loa.

poderia dificultar o ajuste daquele pico. Na figura 2.24 pode-se notar o dubleto do 1112–1115 keV. Também, na figura 2.12, pode-se observar os picos ajustados pelo IDEFIX.

O ^{69}Zn e o ^{71}Zn não foram identificados, principalmente por conta da meia-vida, $T_{1/2} < 3 \text{ min.}$, ou $55 \text{ min.} < T_{1/2} < 15 \text{ h}$, respectivamente, que está na faixa de meia-vida não otimizada pelas condições experimentais. Além disso, para $T_{1/2} < 3 \text{ min.}$, o fundo produzido por ^{28}Al e ^{24}Na , dificultam sua medição.

Sr

Pôde-se quantificar o estrôncio através do ^{85}Sr ($T_{1/2} = 64,8 \text{ d}$). Deve-se notar que ele possui apenas um gama intenso ($E_\gamma = 514,0 \text{ keV}$, $I = 96\%$), próximo do pico de 511 keV, o que poderia dificultar o ajuste.

Entretanto, o dubleto 511–514 keV pôde ser ajustado facilmente no IDEFIX, figura 2.14. O ^{89}Sr não foi medido, uma vez que possui apenas um gama ($E_\gamma = 909,0 \text{ keV}$), cuja intensidade é $I_\gamma = 0,00956\%$.

Cr

O único isótopo radioativo que possui gamas mais intensos e meia-vida maior é o ^{51}Cr ($T_{1/2} = 27,7 \text{ d}$), cujo único gama relevante é o de 320,1 keV ($I = 9,9\%$). Este gama

Figura 2.12: Pico de 1115 keV do ^{65}Zn (canal 2027) para medidas de Kilimanjaro 1, 73 dias após a irradiação e espectro medido por 25,0 h. No canal 5010 nota-se o pico de 1112 keV do ^{152}Eu e no 5050, o pico de 1121 keV do ^{182}Ta e do ^{46}Sc .

situa-se numa região de mais baixa energia e sofre interferência do ^{147}Nd ($T_{1/2} = 11,0\text{ d}$, $E_\gamma = 319,4\text{ keV}$, $I_\gamma = 2,13\%$). Esta interferência é $< 5\%$ e foi devidamente subtraída. Ele também encontra-se próximo ao pico de 312 keV do ^{233}Pa ($T_{1/2} = 27,0\text{ d}$, $I_\gamma = 38,5\%$), que é quase 20 vezes mais intenso e por isso, o ajuste foi altamente dependente das condições iniciais dos parâmetros ajustados.

Já o ^{55}Cr ($T_{1/2} = 3,5\text{ min.}$), que também é formado por captura de nêutrons térmicos, não possui gamas intensos e, por isso, é inviável identificá-lo.

Na figura 2.15 é possível notar a curva de decaimento para o ^{51}Cr , para medições na amostra de Kauai.

Zr

O zircônio é um dos isótopos mais difíceis de ser detectado. Ele foi medido através do ^{95}Zr , ($T_{1/2} = 64,0\text{ d}$), que possui dois gamas bastante intensos, a saber $E_\gamma = 724,2\text{ keV}$ ($I_\gamma = 44,23\%$) e $E_\gamma = 756,7\text{ keV}$ ($I_\gamma = 54,38\%$).

Figura 2.13: Esquema de níveis do ^{233}Pa , (LNHP, 2014). Observe alguns dos gamas principais medidos, como o 311 keV, 340 keV e 398 keV.

Figura 2.14: Pico de 514 keV do ^{85}Sr (canal 2325) para medidas de Kilimanjaro 1., 73 dias após a irradiação e espectro medido por 25,0 h. No canal 2321 encontra-se o pico de aniquilação.

Entretanto, o ^{154}Eu ($T_{1/2} = 8,6 \text{ a}$), imensamente mais abundante, possui dois gamas nesta mesma região: $E_\gamma = 723,3 \text{ keV}$ ($I_\gamma = 20,06\%$) e $E_\gamma = 756,8 \text{ keV}$ ($I_\gamma = 4,52\%$) que não podem ser desprezados. Neste caso, como o ^{154}Eu possui inúmeros outros gamas, foram utilizados estes para quantificá-lo e daí se determinar qual a taxa de contagem média nestes dois gamas, desta forma subtraindo esta interferência.

Ele também pôde ser quantificado através do $E_\gamma = 765,8 \text{ keV}$ ($I_\gamma = 99,8\%$), fruto do decaimento para ^{95}Nb ($T_{1/2} = 3,6 \text{ d}$). Este pico também sofre interferência, no caso do ^{160}Tb ($T_{1/2} = 72,3 \text{ d}$), cujo gamma é $E_\gamma = 765,3 \text{ keV}$ ($I_\gamma = 2,14\%$) e foi devidamente subtraído.

Outra interferência que foi considerada e afeta tanto o pico do ^{95}Zr quanto o do ^{95}Nb é a fissão induzida por nêutrons térmicos do ^{235}U , cujos máximos da distribuição de massa situam-se em torno de $A \approx 90$ e $A \approx 140$. Através da quantificação do urânio é possível fazer o processo reverso e determinar qual a interferência neste pico. Estas interferências somadas são inferiores à 5%.

Figura 2.15: Curva de decaimento para o pico de 320,1 keV do ^{51}Cr na amostra Mauna Loa. Tempo de meia-vida foi fixado no ajuste, deixando como parâmetro livre a atividade após a irradiação.

Na figura 2.16 é possível notar o ajuste dos dois picos do ^{95}Zr .

U

No caso de medidas longas, o urânio pôde ser quantificado através dos produtos da fissão induzida por nêutrons térmicos do ^{235}U , em especial através do ^{140}Ba , cuja produção deste isótopo só é possível por este canal de reação. Exceto em algumas amostras do Havaí, como em Mauna Loa e Kilauea, cujo pico do bário não apareceu e por isso foram quantificadas via irradiações curtas, utilizou-se apenas as medidas de irradiações longas para quantificá-lo, por conta da melhor estatística e, por conseguinte, melhor precisão experimental.

A identificação de fissão é de extrema importância, uma vez que isso representa inúmeras interferências na quantificação de outros picos, que também poderiam ser

Figura 2.16: Picos de 724 keV (canal 3268) e 757 keV (canal 3415) do ^{95}Zr e do ^{154}Eu para medidas de Kilimanjaro 1, 73 dias após a irradiação e espectro medido por 25,0 h. Pode-se notar que as intensidades dos picos são semelhantes, devido à ocorrência de soma com os picos do ^{154}Eu .

produzidos pela fissão do urânio, como o ^{140}La , ^{95}Zr e ^{95}Nb , uma vez que os máximos da distribuição de massa dos produtos da fissão do urânio encontram-se em ≈ 90 e ≈ 140 .

Figura 2.17: Parte do esquema de níveis do ^{152}Eu , (LNHP, 2014). Pode-se notar alguns dos gamas facilmente medidos, como o 1112 keV, 1085 keV e o 121 keV.

Figura 2.18: Espectro de Kilimanjaro 1 obtido 30,7 *min.* após a irradiação e com 175 *s* de tempo vivo. Mesmo assim, pode-se observar isótopos de meia-vida curtas, como o ^{27}Mg e o ^{28}Al . Medida à 10 *cm* do detector.

Figura 2.19: Espectro de Kilimanjaro 1 obtido 49,5 *min.* após a irradiação e com 181 s de tempo vivo. Medida à 10 cm do detector.

Figura 2.20: Espectro do *eppendorf* irradiado obtido 21,9 minutos após a irradiação e com 301 s de tempo vivo. Como ele equivale a soma do fundo mais a atividade do *eppendorf*, subtraiu-se este espectro dos demais, que contém também a atividade destes. Como pode-se notar, está subtração é desprezível, quando se compara com a atividade das amostras. Observa-se também o ^{41}Ar devido à captura de nêutrons térmicos pelo ^{40}Ar , que está presente no ar encapsulado no *eppendorf*.

Figura 2.21: Espectro de Kilimanjaro 2 obtido 11 dias após a irradiação e com 33,0 *h* de tempo vivo. Picos somas, reais e acidentais (empilhamentos) também estão presentes. Medida encostada no detector.

Figura 2.23: Espectro de Kilimanjaro 2 de 500 a 1000 keV obtido 11 dias após a irradiação e com 33,0 h de tempo vivo. Medido emcostado no detector.

Figura 2.25: Espectro de Kilimanjaro 2 de 1500 a 2000 keV obtido 11 dias após a irradiação e com 33,0 h de tempo vivo. A soma 308 keV e 1221 keV é do ^{182}Tl .

Figura 2.26: Espectro de Kilimanjaro 2 de 2000 a 2500 keV obtido 11 dias após a irradiação e com 33,0 h de tempo vivo. Medido encostado no detector.

Figura 2.27: Espectro de Kilimanjaro 2 de 2500 a 3100 keV obtido 11 dias após a irradiação e com 33,0 h de tempo vivo. Medido encostado no detector.

Figura 2.28: Espectro de Kilauea obtido 73 dias após a irradiação e com 23,3 h de tempo vivo. Medida à 12 cm do detector.

Tabela 2.3: Abundância de elementos em rochas vulcânicas do Havai e Kilimanjaro. Valores em ppm

Elemento\Amostra	Kauai (ppm)	Kilauea (ppm)	Mauna Loa (ppm)	Haleakala (ppm)	Kilimanjaro 1 (ppm)	Kilimanjaro2 (ppm)
massa (g)	1,1238	1,0631	1,1408	1,3540	1,2101	1,2054
Al	$7,1(11) \cdot 10^4$	$8,0(7) \cdot 10^4$	$5,69(8) \cdot 10^4$	$1,88(20) \cdot 10^5$	$9,2(12) \cdot 10^4$	$8,65(11) \cdot 10^4$
As	—	—	—	—	$2,7(5)$	$2,6(5)$
Ba	$3,10(6) \cdot 10^2$	$1,09(4) \cdot 10^2$	$1,00(3) \cdot 10^2$	$4,89(5) \cdot 10^2$	$8,60(10) \cdot 10^2$	$8,77(27) \cdot 10^2$
Ca	$6,4(15) \cdot 10^3$	$7,5(12) \cdot 10^3$	$5,6(13) \cdot 10^3$	$4,7(7) \cdot 10^3$	$8(3) \cdot 10^2$	$1,2(3) \cdot 10^3$
Ce	$4,74(16) \cdot 10$	$3,31(11) \cdot 10$	$2,23(6) \cdot 10$	$6,76(13) \cdot 10$	$2,72(6) \cdot 10^2$	$3,19(11) \cdot 10^2$
Cl	$10(6)$	$2,5(8) \cdot 10^2$	—	$2,0(5) \cdot 10^2$	$1,23(22) \cdot 10^3$	$1,31(28) \cdot 10^3$
Co	$6,78(3) \cdot 10$	$4,302(27) \cdot 10$	$5,325(25) \cdot 10$	$5,273(15) \cdot 10$	$3,797(17)$	$4,180(27)$
Cr	$1,369(25) \cdot 10^3$	$1,2(3) \cdot 10$	$1,221(23) \cdot 10^3$	$1,222(15) \cdot 10^3$	$4,13(6) \cdot 10^{-1}$	$1,849(29) \cdot 10^{-1}$
Cs	$1,78(7)$	$8,81(29) \cdot 10^{-1}$	$8,02(25) \cdot 10^{-1}$	$6,01(16) \cdot 10^{-1}$	$1,86(3) \cdot 10$	$2,05(7) \cdot 10$
Dy	$4,38(26)$	$6,33(22)$	$4,37(25)$	$4,47(17)$	$7,2(3)$	$8,1(4)$
Eu	$1,238(5)$	$1,560(8)$	$1,101(5)$	$1,676(5)$	$3,281(9)$	$4,289(26)$
Fe	$8,67(3) \cdot 10^4$	$7,70(4) \cdot 10^4$	$7,98(3) \cdot 10^4$	$8,700(23) \cdot 10^4$	$3,100(10) \cdot 10^4$	$3,384(18) \cdot 10^4$
Hf	$2,51(6)$	$3,89(11)$	$2,94(8)$	$5,14(9)$	$2,43(5) \cdot 10$	$2,83(11) \cdot 10$
K	$7,3(15) \cdot 10^3$	$3,3(8) \cdot 10^3$	$3,7(14) \cdot 10^3$	$2,9(9) \cdot 10^3$	$4,47(6) \cdot 10^4$	$6,1(10) \cdot 10^4$
La	$1,88(5) \cdot 10$	$1,24(4) \cdot 10$	$8,16(20)$	$1,90(6) \cdot 10$	$1,82(4) \cdot 10^2$	$1,500(13) \cdot 10^2$
Lu	$2,35(19) \cdot 10^{-1}$	$4,0(3) \cdot 10^{-1}$	$6,4(6) \cdot 10^{-1}$	$7,9(8) \cdot 10^{-1}$	$4,7(24) \cdot 10^{-1}$	$5,3(5) \cdot 10^{-1}$
Mg	$5,5(9) \cdot 10^3$	$3,9(5) \cdot 10^3$	$4,2(8) \cdot 10^3$	$3,9(5) \cdot 10^3$	$2,5(4) \cdot 10^3$	$3,06(5) \cdot 10^3$
Mn	$1,275(17) \cdot 10^3$	$1,459(13) \cdot 10^3$	$1,258(17) \cdot 10^3$	$1,430(12) \cdot 10^3$	$1,453(13) \cdot 10^3$	$1,499(20) \cdot 10^3$
Na	$1,307(19) \cdot 10^4$	$1,742(17) \cdot 10^4$	$1,353(20) \cdot 10^4$	$1,408(13) \cdot 10^4$	$6,24(6) \cdot 10^4$	$6,10(9) \cdot 10^4$
Nd	$1,86(6) \cdot 10$	$1,67(7) \cdot 10$	$1,37(6) \cdot 10$	$2,36(9) \cdot 10$	$1,24(4) \cdot 10$	$3,13(10) \cdot 10$
Rb	$2,37(19) \cdot 10$	$9,6(8)$	$1,01(8) \cdot 10$	$1,34(11) \cdot 10$	$1,83(16) \cdot 10^3$	$8,2(7) \cdot 10$
Sb	$8,33(16) \cdot 10^{-2}$	$4,79(6) \cdot 10^{-1}$	$2,074(24) \cdot 10^{-1}$	$2,301(24) \cdot 10^{-1}$	$5,58(4) \cdot 10^{-1}$	$5,90(14) \cdot 10^{-1}$
Sc	$2,590(23) \cdot 10$	$3,16(4) \cdot 10$	$2,982(27) \cdot 10$	$2,189(13) \cdot 10$	$1,228(9)$	$1,385(16)$
Sm	$7,0(13)$	$7,8(7)$	$5,0(8)$	$9,2(14)$	$1,48(17) \cdot 10$	$1,57(16) \cdot 10$
Sr	$4,5(4) \cdot 10^2$	$3,7(4) \cdot 10^2$	$2,98(26) \cdot 10^2$	$4,80(28) \cdot 10^2$	$4,9(3) \cdot 10^2$	$2,20(15) \cdot 10^2$
Ta	$1,581(9)$	$8,60(7) \cdot 10^{-1}$	$4,58(4) \cdot 10^{-1}$	$2,111(8)$	$1,743(7) \cdot 10$	$2,185(22) \cdot 10$
Tb	$6,24(9) \cdot 10^{-1}$	$9,07(15) \cdot 10^{-1}$	$7,00(9) \cdot 10^{-1}$	$7,77(9) \cdot 10^{-1}$	$4,65(5) \cdot 10^{-1}$	$2,59(4) \cdot 10^{-1}$
Th	$2,300(18)$	$1,030(14)$	$6,81(7) \cdot 10^{-1}$	$3,590(18)$	$3,725(20) \cdot 10$	$4,13(6) \cdot 10$
Ti	$1,25(7) \cdot 10^4$	$1,61(8) \cdot 10^4$	$1,01(4) \cdot 10^4$	$1,28(7) \cdot 10^4$	$5,2(6) \cdot 10^3$	$4,6(3) \cdot 10^3$
U	$3,2(10) \cdot 10^{-1}$	$4,8(21) \cdot 10^{-1}$	—	$7,5(13) \cdot 10^{-1}$	$8,7(5)$	$3,89(20)$
Yb	$1,27(9)$	$2,07(17)$	$1,67(14)$	$1,67(6)$	$3,98(12)$	$3,3(3)$
Zn	$2,37(8) \cdot 10^2$	$3,13(22) \cdot 10^2$	$1,96(7) \cdot 10^2$	$1,63(4) \cdot 10^2$	$2,16(6) \cdot 10^2$	$2,25(10) \cdot 10^2$
Zr	$1,89(18) \cdot 10^2$	$1,7(4) \cdot 10^2$	$1,27(28) \cdot 10^2$	$2,25(25) \cdot 10^2$	$1,33(4) \cdot 10^3$	$7,87(20) \cdot 10^2$

Tabela 2.4: Abundância dos elementos determinados em rochas vulcânicas. Normalização na escala siderófila, tal que $\log(N(Fe)) = 7,46$.

Elemento\Amostra	Kauai	Kilauea	Mauna Loa	Haleakala	Kilimanjaro 1	Kilimanjaro2
Al	7,69(5)	7,790(27)	7,629(4)	8,11(3)	8,25(4)	8,184(4)
As	–	–	–	–	3,27(6)	3,22(5)
Ba	4,623(6)	4,219(12)	4,166(10)	4,819(3)	5,512(3)	5,483(9)
Ca	6,48(7)	6,59(5)	6,45(7)	6,34(4)	6,04(11)	6,13(9)
Ce	3,798(10)	3,694(10)	3,506(8)	3,951(6)	5,004(7)	5,035(10)
Cl	4,72(17)	5,17(9)	– –	5,01(9)	6,25(5)	6,246(6)
Co	4,3301(14)	4,1838(19)	4,2607(14)	4,2192(9)	3,5245(14)	3,5283(20)
Cr	5,689(6)	3,70(9)	5,675(6)	5,639(4)	2,615(5)	2,229(5)
Cs	2,396(11)	2,142(10)	2,085(9)	1,923(8)	3,862(5)	3,865(10)
Dy	2,700(18)	2,911(10)	2,734(17)	2,707(11)	3,363(12)	3,375(15)
Eu	2,180(12)	2,3313(16)	2,1683(13)	2,3000(8)	3,0499(9)	3,1281(18)
Fe	7,46(11)	7,46(14)	7,46(13)	7,46(8)	7,46(9)	7,46(16)
Hf	2,417(8)	2,659(9)	2,522(9)	2,723(6)	3,850(6)	3,877(11)
K	6,54(7)	6,24(8)	6,28(11)	6,14(9)	7,77(4)	7,87(5)
La	3,401(7)	3,273(9)	3,073(7)	3,4031(10)	4,832(6)	4,7107(26)
Lu	1,397(25)	1,679(25)	1,865(26)	1,92(3)	2,15(15)	2,162(27)
Mg	6,62(5)	6,53(4)	6,54(5)	6,47(4)	6,72(4)	6,77(5)
Mn	5,635(4)	5,7448(28)	5,665(4)	5,6828(25)	6,1379(28)	6,113(4)
Na	7,024(5)	7,200(30)	7,075(5)	7,0549(27)	8,1491(29)	8,101(4)
Nd	3,380(10)	3,384(12)	3,284(14)	3,534(10)	3,649(10)	4,013(10)
Rb	3,712(25)	3,373(25)	3,378(26)	3,462(25)	5,046(26)	4,659(26)
Sb	1,104(6)	1,915(4)	1,536(4)	1,544(3)	2,3769(24)	2,363(7)
Sc	4,0295(27)	4,168(3)	4,1264(27)	3,9549(18)	3,1520(22)	3,166(3)
Sm	2,93(6)	3,038(29)	2,83(5)	3,05(5)	3,709(4)	3,70(3)
Sr	4,976(25)	4,95(3)	4,836(26)	5,006(18)	5,465(21)	5,078(21)
Ta	2,2102(17)	1,9974(23)	1,7076(23)	2,3344(11)	3,6993(12)	3,759(3)
Tb	1,863(5)	2,077(5)	1,949(4)	1,957(3)	2,182(3)	1,190(5)
Th	2,2646(23)	1,967(4)	1,772(3)	2,4569(15)	3,9211(16)	3,928(5)
Ti	6,686(16)	6,847(14)	6,627(12)	6,693(15)	6,75(3)	6,662(16)
U	1,39(9)	1,62(13)	–	1,77(5)	3,277(16)	2,891(16)
Yb	2,136(21)	2,398(25)	2,290(25)	2,251(11)	3,077(9)	2,954(29)
Zn	4,829(11)	5,000(21)	4,781(11)	4,663(8)	5,235(9)	5,214(14)
Zr	4,585(29)	4,60(7)	4,45(7)	4,66(3)	5,880(10)	5,613(8)

2.2 Espectroscopia Gama em Anti-Coincidência e Coincidência

Nesta seção serão discutidas as medidas em amostras do Equador, Islândia, Índia, Mt. Etna, Ruanda e Uganda. Foi utilizado um sistema de supressão Compton nelas. Com exceção de Ruanda, houve a irradiação de duas amostras por localização geográfica.

A preparação dos alvos seguiu a já discutida anteriormente para espectroscopia gama simples, 2.1.1, com exceção do *ultrasonic cleaner*, que não foi utilizado.

As amostras foram irradiadas a um fluxo de $4,7 \cdot 10^{11} \text{ n}/(\text{s} \cdot \text{cm}^2)$ por 8 horas e foram realizadas medidas por tempos variados, de forma a se otimizar medições de meias-vidas da ordem de dias até anos. Novamente, por conta da proteção radiológica as amostras só foram liberadas aproximadamente 7 dias após as irradiações, de forma que medições de isótopos com baixa estatística e de meias-vida inferior à 2 dias foram dificultadas. Foram utilizados dois detectores de germânio hiperpuro (HPGe), um deles associado a um aparato de antioincidência com detectores de NaI, e outro HPGe, o mesmo utilizado nas medidas anteriores. A seguir, será descrita mais detalhadamente a aparelhagem experimental do sistema de anti-coincidência. Para o arranjo experimental de coincidência, visando-se medir o irídio, foram utilizados estes dois detectores de germânio.

2.2.1 Arranjo Experimental de Anti-coincidência

Na figura 2.29 há um desenho esquemático da geometria do sistema de antioincidência. Já na figura 2.30 encontra-se um diagrama esquemático da eletrônica utilizada no sistema de antioincidência. O arranjo consistiu de 5 detectores de iodeto de sódio (NaI) com pré-amplificadores embutidos, 4 com aproximadamente $4 \times 4 \times 4$ polegadas e outro com aproximadamente $6 \times 6 \times 6$ polegadas, de forma a envolver completamente a amostra, que ficava no centro. Cada detector era conectado a um amplificador e em

seguida a um módulo *timing single channel analyzer* (SCA), que seleciona a faixa de energia envolvida na supressão Compton, produzindo um sinal lógico.

Cada detector teve a voltagem de operação configurada de forma a corresponder ao mesmo ganho do amplificador do detector de germânio, i.e., de 0 à 3000 keV, de forma que qual-

Figura 2.29: Desenho esquemático da geometria do sistema de anticoincidência. Os detectores foram colocados de tal maneira que a distância entre o detector de $6 \times 6 \times 6$ de NaI e o de HPGe estavam quase encostados.

quer fótons-Comptons

que atingissem um dos detectores de NaI simultaneamente com o de HPGe não teria o evento marcado. Os **timing SCA** foram conectados a um módulo de coincidência universal que transformava o sinal dos 5 detectores em um único, de forma a operar como um único detector. O módulo de coincidência universal foi conectado a um *gate and delay generator* que era responsável por atrasar o sinal em ao menos $0,5\mu s$ antes do sinal do detector de germânio. O sinal do detector de germânio, após o amplificador foi conectado ao MCA de 8192 canais, que possuía uma entrada para o sinal provindo do *gate and delay generator*. Através do MAESTRO, o MCA realizava a anticoincidência entre os sinais.

Foram utilizados tanto relógio de tempo vivo quanto real, conforme a conveniência da medida. Foram também observadas os tempos de mortos e corrigidos, quando relevantes.

Foi-se utilizado um detector de cristal de germânio hiper-puro (HPGe), tipo *p*, 60%

de eficiência relativa.

A análise de desempenho do sistema de anti-coinidência foi avaliada de três maneiras distintas, para isso utilizando-se uma fonte de ^{60}Co :

- através da razão entre a área do pico de 1173 keV , A_p , e a área da região de contínuo Compton, A_C devido a este pico;
- através do fator de supressão, A_s , que é a razão do número total de contagens de todo o espectro sem anti-coinidência pelo número total de contagens de todo o espectro com;
- através da razão entre a área do pico soma obtida com o sistema de anti-coinidência e sem, A_{ps} .

Obteve-se os seguintes resultados:

$$\left(\frac{A_p}{A_C}\right)_{\mathcal{I}} = 0,19$$

$$\left(\frac{A_p}{A_C}\right)_{\mathcal{II}} = 0,30$$

$$A_s = 4,3$$

$$A_{ps} = 1,19$$

onde $\mathcal{I}$ refere-se ao espectro sem supressão e $\mathcal{II}$, ao espectro com supressão.

Deve-se observar que o fator de supressão é calculado para os espectros com e sem sistema de anti-coinidência comparados canal a canal, mas, obviamente, o fator de supressão diferirá em se analisar o espectro de uma fonte de ^{60}Co ou o espectro

das amostras irradiadas, que possuem inúmeros isótopos que emitem vários gamas em coincidência, além de outros efeitos de detecção como empilhamentos que também são suprimidos. Assim, os cálculos prévios servem como indicativos do fator de supressão.

Na figura 2.31 pode-se observar o espectro com e sem anti-coincidência, sobrepostos, de Ruanda obtido 51 dias após a irradiação e com 72,7 h de tempo vivo. Pode-se notar como o sistema de anti-coincidência diminui bastante o fundo intrínseco, principalmente onde há um contínuo Compton, permitindo-se identificar picos com maior nitidez. Entretanto, não permitiu que se identificasse novos picos relevantes. Como a maioria dos isótopos possui mais de um pico de intensidade apreciável o contínuo Compton é, em geral, um efeito contornável. Entretanto, o sistema de anticoincidência não apresentou eficiência suficiente para que se medisse outros isótopos de interesse, como o ^{198}Au ($T_{1/2} = 2,7\text{ d}$, $E_\gamma = 411\text{ keV}$, $I_\gamma = 95,6\%$), devido ao pico do ^{152}Eu ($T_{1/2} = 13,5\text{ y}$, $E_\gamma = 411\text{ keV}$, $I_\gamma = 2,2\%$), que apesar da meia-vida muito maior e da intensidade muito menor, aparece com intensidade o suficiente para em medições da ordem de dias após a irradiação continuar sendo observada, mesmo com a utilização de supressor Compton.

Nas tabelas 2.5, 2.6, 2.7 e 2.8, pode-se observar os resultados obtidos para estas novas medições.

Figura 2.30: Diagrama da eletrônica de espectroscopia gama em anti-coincidência.

Tabela 2.5: Abundância dos elementos determinados em rochas vulcânicas em amostras do Equador, Islândia e Índia. Valores em ppm

Elemento\Amostra massa (g)	Ecuador 1 (ppm)	Ecuador 2 (ppm)	Iceland 1 (ppm)	Iceland 2 (ppm)	India 2 (ppm)	India Basalt (ppm)
Ba	0,6827 $1,05(4) \cdot 10^3$	2,1431 $2,96(18) \cdot 10^2$	1,2369 $1,50(13) \cdot 10^2$	2,1238 $1,4(3) \cdot 10^2$	2,53 $7,4(4) \cdot 10^2$	2,1053 $7,3(11) \cdot 10$
Ce	$2,57(9) \cdot 10$	$1,42(6) \cdot 10$	$4,62(16) \cdot 10$	$4,05(14) \cdot 10$	$3,31(12) \cdot 10$	$3,13(11) \cdot 10$
Co	$1,503(13) \cdot 10$	$2,148(19) \cdot 10$	$3,391(27) \cdot 10$	$5,00(4) \cdot 10$	$3,112(26) \cdot 10$	$4,89(4) \cdot 10$
Cr	$1,041(26) \cdot 10^2$	$6,49(17) \cdot 10$	$4,98(12) \cdot 10^2$	$3,27(8) \cdot 10^2$	$3,43(8) \cdot 10^2$	$7,44(19) \cdot 10$
Cs	7,0(3)	6,9(4)	1,36(12)	$9,0(8) \cdot 10^{-1}$	8,7(4)	3,40(17)
Eu	$7,37(8) \cdot 10^{-1}$	$8,12(10) \cdot 10^{-1}$	1,925(19)	1,876(20)	1,536(15)	1,930(20)
Fe	$6,25(4) \cdot 10^4$	$3,467(25) \cdot 10^4$	$1,126(8) \cdot 10^5$	$7,52(5) \cdot 10^4$	$9,02(6) \cdot 10^4$	$1,490(10) \cdot 10^5$
Hf	4,36(19)	2,26(20)	6,7(3)	3,67(17)	3,00(16)	5,96(27)
K	$1,7(5) \cdot 10^4$	$6,0(4) \cdot 10^3$	$1,1(4) \cdot 10^4$	$4,40(25) \cdot 10^3$	$1,5(28) \cdot 10^3$	$5(3) \cdot 10^3$
La	$3,15(27) \cdot 10^2$	$7,8(13) \cdot 10$	$7,9(6) \cdot 10$	$1,1(3) \cdot 10$	6,5(3)	1,93(9)
Lu	$3,8(4) \cdot 10^{-1}$	$4,8(5) \cdot 10^{-1}$	$4,3(4) \cdot 10^{-1}$	$1,35(11) \cdot 10^{-1}$	$1,95(20) \cdot 10^{-1}$	$2,36(23) \cdot 10^{-1}$
Nd	$1,2(4) \cdot 10$	$5,6(10) \cdot 10$	$3,1(5) \cdot 10$	$2,8(4) \cdot 10$	1,7(5)	$2,0(3) \cdot 10$
Rb	$4,0(3) \cdot 10$	$2,6(3) \cdot 10$	$2,00(20) \cdot 10$	$2,4(7) \cdot 10$	$2,64(29) \cdot 10$	9,2(13)
Sb	$4,67(20) \cdot 10^{-1}$	$2,71(28) \cdot 10^{-1}$	$1,88(12) \cdot 10^{-1}$	—	9,28(19)	—
Sc	$1,788(29) \cdot 10$	$1,43(23) \cdot 10$	$2,82(4) \cdot 10$	$2,245(26) \cdot 10$	$2,59(4) \cdot 10$	$4,59(7) \cdot 10$
Sr	$5,5(7) \cdot 10^2$	$3,9(5) \cdot 10^2$	$4,3(5) \cdot 10^2$	$3,7(4) \cdot 10^2$	$7,5(9) \cdot 10^2$	$2,9(4) \cdot 10^2$
Ta	$1,75(8) \cdot 10^{-1}$	$1,59(12) \cdot 10^{-1}$	1,652(26)	1,075(16)	$2,14(7) \cdot 10^{-1}$	$5,43(13) \cdot 10^{-1}$
Tb	$4,12(24) \cdot 10^{-1}$	$3,52(26) \cdot 10^{-1}$	$9,1(5) \cdot 10^{-1}$	$7,6(5) \cdot 10^{-1}$	$5,2(4) \cdot 10^{-1}$	1,23(9)
Th	2,73(6)	$8,1(3) \cdot 10^{-1}$	3,02(7)	1,49(4)	5,50(12)	3,65(8)
U	—	—	—	—	—	—
Yb	1,89(18)	$6,6(8) \cdot 10^{-1}$	2,55(24)	1,86(17)	2,12(20)	4,8(4)
Zn	$1,47(7) \cdot 10^2$	$1,87(9) \cdot 10^2$	$1,37(6) \cdot 10^2$	$1,18(6) \cdot 10^2$	$8,6(4) \cdot 10$	$2,53(16) \cdot 10^2$
Zr	$5,19(25) \cdot 10$	$3,7(7) \cdot 10$	$1,10(4) \cdot 10^2$	$8,8(3) \cdot 10$	$7,1(4) \cdot 10$	$6,9(3) \cdot 10$

Tabela 2.6: Abundância dos elementos determinados em rochas vulcânicas em amostras do Mt. Etna, Ruanda e Uganda. Valores em ppm

Elemento\Amostra massa (g)	Mt. Etna 1 (ppm)	Mt. Etna 2 (ppm)	Rwanda (ppm)	Uganda 1 (ppm)	Uganda 2 (ppm)
Ba	2,011	1,1740	2,0186	1,7729	1,2928
Ce	$3,14(22) \cdot 10^2$	$1,23(6) \cdot 10^3$	$2,76(12) \cdot 10^3$	$7,7(3) \cdot 10^2$	$1,20(6) \cdot 10^3$
Co	$9,8(3) \cdot 10$	$1,15(4) \cdot 10^2$	$2,68(9) \cdot 10^2$	$1,48(5) \cdot 10^2$	$1,86(6) \cdot 10^2$
Cr	$3,576(29) \cdot 10$	$3,404(28) \cdot 10$	$1,250(10) \cdot 10$	$6,64(5) \cdot 10$	$3,88(3) \cdot 10$
Cs	$4,45(11) \cdot 10$	$1,94(5) \cdot 10$	$6,01(19)$	$1,52(4) \cdot 10^3$	$3,02(7) \cdot 10^2$
Eu	$5,21(26)$	$7,5(3)$	$8,6(4)$	$4,96(25)$	$6,1(3)$
Fe	$2,622(25)$	$2,680(24)$	$3,54(3)$	$2,340(23)$	$2,857(24)$
Hf	$5,81(4) \cdot 10^4$	$8,13(6) \cdot 10^4$	$6,26(4) \cdot 10^4$	$1,056(8) \cdot 10^5$	$8,56(6) \cdot 10^4$
K	$3,81(18)$	$4,82(21)$	$9,1(4)$	$6,55(30)$	$6,32(28)$
La	$4(4) \cdot 10^3$	$1,2(3) \cdot 10^4$	$1,04(26) \cdot 10^4$	$1,1(5) \cdot 10^4$	$1,3(5) \cdot 10^4$
Lu	$5,7(4) \cdot 10^2$	$2,44(19) \cdot 10$	$1,87(12) \cdot 10^2$	$1,90(18) \cdot 10$	$1,47(10) \cdot 10^3$
Nd	$3,49(29) \cdot 10^{-1}$	$2,99(20) \cdot 10^{-1}$	$4,7(4) \cdot 10^{-1}$	$2,00(18) \cdot 10^{-1}$	$8,1(5) \cdot 10^{-1}$
Rb	$7,7(10) \cdot 10$	$5,1(6) \cdot 10$	$1,11(14) \cdot 10^2$	$5,1(8) \cdot 10$	$1,28(16) \cdot 10^2$
Sb	$2,75(21) \cdot 10$	$6,6(4) \cdot 10$	$2,29(15) \cdot 10^2$	$7,9(6) \cdot 10$	$1,14(8) \cdot 10^2$
Sc	$1,7(4) \cdot 10^{-1}$	$6,7(14) \cdot 10^{-2}$	$1,16(14) \cdot 10^{-1}$	–	–
Sr	$2,65(4) \cdot 10$	$2,560(24) \cdot 10$	$7,64(7)$	$3,41(5) \cdot 10$	$2,962(28) \cdot 10$
Ta	$1,02(12) \cdot 10^3$	$1,18(14) \cdot 10^3$	$1,16(14) \cdot 10^3$	$8,3(10) \cdot 10^2$	$9,2(11) \cdot 10^2$
Tb	$1,884(29)$	$1,852(27)$	$7,07(11)$	$4,76(8)$	$5,60(8)$
Th	$6,0(4) \cdot 10^{-1}$	$1,04(6)$	$1,36(8)$	$4,8(4) \cdot 10^{-1}$	$1,03(6)$
U	$5,60(10)$	$8,71(13)$	$3,32(4) \cdot 10$	$1,387(24) \cdot 10$	$1,375(21) \cdot 10$
Yb	$2,0(5)$	–	$3,6(7)$	–	–
Zn	$1,40(13)$	$2,47(23)$	$2,75(25)$	$2,02(20)$	$2,28(21)$
Zr	$1,27(6) \cdot 10^2$	$1,79(11) \cdot 10^2$	$2,19(8) \cdot 10^2$	$1,77(8) \cdot 10^2$	$1,81(8) \cdot 10^2$
	$1,10(5) \cdot 10^2$	$1,01(4) \cdot 10^2$	$1,97(6) \cdot 10^2$	$1,14(5) \cdot 10^2$	$1,49(6) \cdot 10^2$

Tabela 2.7: Abundância dos elementos determinados em rochas vulcânicas em amostras do Equador, Islândia e Índia. Normalização na escala siderófila, tal que $\log(N(Fe)) = 7,46$.

Elemento\Amostra	Ecuador 1	Ecuador 2	Iceland 1	Iceland 2	India 2	India Basalt
Ba	5,296(11)	5,001(19)	4,192(26)	4,35(6)	4,982(17)	3,76(4)
Ce	3,674(11)	3,672(12)	3,673(10)	3,791(10)	3,625(11)	3,383(11)
Co	3,8177(26)	4,2288(26)	3,9154(24)	4,2591(25)	3,9744(25)	3,9528(24)
Cr	4,712(7)	4,764(8)	5,137(7)	5,13(7)	5,071(7)	4,189(8)
Cs	3,136(14)	3,383(16)	2,164(27)	2,16(26)	3,066(14)	2,442(15)
Eu	2,097(3)	2,395(4)	2,2582(29)	2,422(3)	2,2563(30)	2,138(3)
Fe	7,46(21)	7,46(22)	7,46(21)	7,46(21)	7,46(21)	7,46(21)
Hf	2,799(13)	2,77(26)	2,73(16)	2,644(14)	2,477(16)	2,557(14)
K	7,06(8)	6,855(20)	6,62(12)	6,382(17)	5,8(6)	6,16(18)
La	4,767(26)	4,42(5)	3,914(24)	3,23(8)	2,924(14)	2,177(15)
Lu	1,75(3)	2,11(3)	1,552(29)	1,219(25)	1,3(3)	1,164(29)
Nd	3,35(10)	4,26(6)	3,49(5)	3,61(4)	2,34(8)	3,17(5)
Rb	4,079(23)	4,15(4)	3,52(3)	3,77(9)	3,74(3)	3,06(4)
Sb	1,995(13)	2,01(3)	1,345(20)	–	3,134(6)	–
Sc	4,011(5)	4,17(5)	3,952(5)	4,029(3)	4,013(5)	4,043(5)
Sr	5,21(4)	5,31(4)	4,85(4)	4,96(4)	5,18(4)	4,56(4)
Ta	1,398(14)	1,611(23)	2,116(5)	2,105(4)	1,324(10)	1,511(7)
Tb	1,824(18)	2,012(22)	1,915(18)	2,009(22)	1,764(23)	1,923(22)
Th	2,482(7)	2,207(12)	2,27(7)	2,138(8)	2,626(6)	2,23(7)
U	–	–	–	–	–	–
Yb	2,448(28)	2,25(3)	2,324(28)	2,363(28)	2,339(28)	2,477(28)
Zn	4,763(14)	5,123(14)	4,477(14)	4,589(14)	4,368(15)	4,622(20)
Zr	4,166(15)	4,28(5)	4,235(12)	4,318(11)	4,143(16)	3,915(14)

Tabela 2.8: Abundância dos elementos determinados em rochas vulcânicas em amostras do Mt. Etna, Ruanda e Uganda. Normalização na escala siderófila, tal que $\log(N(Fe)) = 7,46$.

Elemento\Amostra	Mt. Etna 1	Mt. Etna 2	Rwanda	Uganda 1	Uganda 2
Ba	4,801(21)	5,25(14)	5,713(13)	4,933(12)	5,215(15)
Ce	4,286(10)	4,21(10)	4,692(10)	4,208(10)	4,398(10)
Co	4,2256(24)	4,0586(25)	3,7372(25)	4,2349(24)	4,0933(25)
Cr	4,375(7)	3,868(7)	3,473(9)	5,648(7)	5,039(7)
Cs	3,036(15)	3,047(13)	3,223(13)	2,756(15)	2,937(15)
Eu	2,6794(28)	2,5435(27)	2,7778(28)	2,3707(29)	2,5489(26)
Fe	7,46(21)	7,46(21)	7,46(21)	7,46(21)	7,46(21)
Hf	2,772(14)	2,728(13)	3,118(13)	2,748(14)	2,824(14)
K	6,43(29)	6,77(8)	6,84(8)	6,65(13)	6,8(11)
La	5,056(22)	3,542(24)	4,539(19)	3,319(28)	5,3(21)
Lu	1,743(25)	1,53(20)	1,837(22)	1,241(27)	1,941(20)
Nd	4,17(4)	3,84(4)	4,3(4)	3,73(4)	4,22(4)
Rb	3,95(23)	4,183(20)	4,839(20)	4,149(22)	4,399(20)
Sb	1,58(8)	1,04(6)	1,39(4)	–	–
Sc	4,213(5)	4,0524(28)	3,6411(28)	4,063(5)	4,0935(28)
Sr	5,51(4)	5,43(4)	5,53(4)	5,16(4)	5,3(4)
Ta	2,46(5)	2,307(4)	3,003(5)	2,603(5)	2,766(4)
Tb	2,023(19)	2,113(18)	2,343(18)	1,667(24)	2,087(18)
Th	2,825(6)	2,872(4)	3,566(4)	2,959(5)	3,048(4)
U	2,37(7)	–	2,59(6)	–	–
Yb	2,351(29)	2,451(28)	2,612(28)	2,25(30)	2,394(28)
Zn	4,73(14)	4,735(19)	4,936(11)	4,617(14)	4,716(14)
Zr	4,524(14)	4,341(11)	4,745(10)	4,281(14)	4,489(12)

2.3 Espectroscopia Gama em Coincidência

Para medidas de coincidência $\gamma - \gamma$, utilizam-se dois detectores de forma a se medir fótons emitidos sucessivamente pelo mesmo núcleo. Como o intervalo de emissão destes dois fótons costuma ser menor que a resolução temporal do sistema de aquisição estes eventos podem ser considerados praticamente instantâneos. Desta maneira, os detectores foram acoplados a uma eletrônica de coincidência a fim de discriminar estes eventos.

Foi elaborado um arranjo experimental de espectroscopia gama em coincidência para medir o irídio, se possível, com maior sensibilidade, uma vez que medidas de espectroscopia gama não tornaram possível sua determinação. O ^{192}Ir possui meia-vida $T_{1/2} = 73,83\text{ d}$ e pode ser produzido através do ^{191}Ir por captura de nêutrons térmicos, cuja seção de choque é $\sigma = 954,4\text{ b}$. Além disso, possui inúmeros gamas intensos, *todos* em coincidência entre si: $E_\gamma = 296,0\text{ keV}$, $I_\gamma = 28,71\%$; $E_\gamma = 308,5\text{ keV}$, $I_\gamma = 29,70\%$; $E_\gamma = 316,5\text{ keV}$, $I_\gamma = 82,86\%$; $E_\gamma = 468,1\text{ keV}$, $I_\gamma = 47,84\%$, como pode ser notado no esquema de níveis do ^{192}Ir , 2.36.

Na Figura 2.32 encontra-se um diagrama esquemático da eletrônica utilizada no sistema de coincidência. O arranjo consistiu de 2 detectores de germânio hiper-puro (HPGe), os mesmos já comentados anteriormente. O sinal de cada detector era conectado a um amplificador e este a um módulo de retardo, de forma a ajustar possíveis atrasos no sinal provocados pela eletrônica. O sinal de um dos detectores após o módulo de retardo foi conectado a um *timing single channel analyzer* (SCA), operado entre 289 keV e 323 keV . Em seguida, este mesmo detector foi ligado a um módulo universal de coincidência e ao módulo *Gate and delay Generator*. Por fim eles foram ligados a um **ADC**. Vale ressaltar que a eletrônica foi adaptada do sistema de supressão Compton utilizada na seção anterior, de forma que alguns módulos não necessários continuaram ligados.

Figura 2.32: Diagrama da eletrônica de espectroscopia gama em coincidência.

O *SCA* foi configurado de forma que voltagem correspondesse aproximadamente às energias de 289 keV e 323 keV . Esse *SCA* funcionava como uma janela de discriminação de eventos coincidentes. Se um fóton com energia neste intervalo fosse medido pelo detector acoplado ao *SCA* e outro fóton fosse simultaneamente medido no outro detector, o evento era registrado.

Foi preparada uma amostra de óxido de irídio (IrO_2), com $m = 1,0107\text{ g}$ e irradiada com nêutrons térmicos, de forma a produzir um padrão de ^{192}Ir para testar o arranjo experimental e medir a eficiência do sistema. Nas figuras 2.33 e 2.34, podem ser vistos os espectros de irídio com e sem coincidência, respectivamente. Foi utilizado o pico de 468 keV para o cálculo da eficiência, uma vez que é um dos picos mais intensos quando em coincidência e, como será visto mais adiante, será utilizado na determinação do limite máximo de detecção.

Sem coincidência, a eficiência do 468 keV é de $\varepsilon = 0,06870(22)$. Em coincidência, de $\varepsilon = 0,00747(5)$, ou seja, aproximadamente 10 vezes inferior em relação à eficiência sem coincidência. Entretanto, na região de 468 keV , o fundo das amostras chega a ser ≈ 150 vezes menor quando em coincidência, de forma que a sensibilidade do aparato experimental deve ser $\approx 30\%$ melhor em relação ao medido em espectroscopia gama

simples (como o número de contagens segue a distribuição de Poisson, a incerteza dele será a raiz do número de contagens).

A quantificação da abundância de irídio nas amostras pode ser estabelecida de duas maneiras distintas. Uma delas, ao se relacionar a área do pico de coincidência com a eficiência de detecção para a energia de cada fóton que é medido em coincidência no detector (X ou Y) em que o fóton é detectado:

$$A_{soma} = N \cdot I_1 \cdot \varepsilon^X(E_1) \cdot Y_{1,2} \cdot \varepsilon^Y(E_2) \cdot W_{1,2} \quad (2.8)$$

onde W_i é a função de correlação angular entre os dois gamas do pico soma (cujo valor será 1, pois os detectores estão afastados angularmente por 180°), $\varepsilon^j(E_i)$ é a eficiência calculada para a energia E_i e detector j , I_1 é a intensidade da primeira transição e $Y_{1,2}$ é a probabilidade da segunda transição ser emitida sendo que a primeira foi emitida.

Outra maneira, dado que foi utilizado um padrão de ^{192}Ir , foi utilizar a eficiência para as energias de interesse e calcular a abundância como em 2.7. Isto é possível pois a eficiência calculada equivale a multiplicação das eficiências dos dois fótons coincidentes em cada detector e a correlação angular. Como as amostras de rochas vulcânicas possuem matrizes complexas, este método carrega menos covariâncias.

Como visto nas figuras 2.37, 2.38, 2.39, 2.40, 2.41 e 2.42a, que amplia a região de 468 keV, a presença do irídio não pôde ser determinada para nenhuma amostra. Na 2.42b pode-se notar a mesma ampliação para a cerâmica padrão, também não sendo determinada. Na figura 2.35 é possível notar um espectro total para Islândia 2.

Por conta da não determinação do irídio, calculou-se o limite máximo de detecção (LMD), B. Os resultados podem ser conferidos na tabela 2.9.

Tabela 2.9: Limite máximo de detecção para o irídio.

Origem	LMD (ppb)
Ecuador 1	$< 0,59$
Ecuador 2	$< 0,40$
Iceland 1	$< 0,69$
Iceland 2	$< 0,29$
India 2	$< 0,38$
India Basalt	$< 0,62$
Mt. Etna 1	$< 0,43$
Mt. Etna 2	$< 0,52$
Rwanda	$< 0,38$
Uganda 1	$< 0,51$
Uganda 2	$< 0,64$

Figura 2.33: Espectro de coincidência do Irídio. Medido por aproximadamente 5 dias.

Figura 2.34: Espectro simples do Iridio. Medido por aproximadamente 3,4 horas.

Figura 2.35: Espectro de coincidência de Islândia 2. Medido por aproximadamente por $\approx 1,8 d$.

Figura 2.36: Esquema de níveis do ^{192}Ir , (LNHP, 2014). Note que há alguns gamas intensos em coincidência, como 296,0 keV, 308,5 keV, 316,5 keV e 468,1 keV.

Figura 2.37: Espectros em coincidência com região de 468 keV ampliada para Equador 1 e 2.

Figura 2.38: Espectros em coincidência com região de 468 keV ampliada para Islândia 1 e 2.

Figura 2.39: Espectros em coincidência com região de 468 keV ampliada para Mt. Etna 1 e 2.

Figura 2.40: Espectros em coincidência com região de 468 keV ampliada para Índia 2 e basalto indiano.

Figura 2.41: Espectros em coincidência com região de 468 keV ampliada para Uganda 1 e 2.

Figura 2.42: Espectros em coincidência com região de 468 keV ampliada para Ruanda e cerâmica padrão.

Capítulo 3

Discussão dos resultados

Na figura 3.1 encontra-se a tabela periódica com os elementos químicos presentes nas amostras analisadas. Já na tabela 3.1 pode-se notar os elementos que foram medidos, ordenados por estrutura química.

Figura 3.1: Tabela periódica com os elementos químicos presentes nas amostras, classificados por estrutura química.

A maioria dos metais alcalinos, alcalinos terrosos e metade dos lantanídeos foram determinados. Também, uma parcela significativa dos metais de transição. Já nos

Tabela 3.1: Elementos químicos identificados nas amostras de rochas vulcânicas, por classificação química.

Metais alcalinos	Metais alcalinos terrosos	Elementos de transição	Lantanídeos	Actinídeos	Metais representativos	Semi-metais	Halogênios
Na, K, Rb, Cs	Mg, Ca, Sr, Ba	Sc, Ti, Cr, Mn, Fe, Co, Zn, Zr, Hf, Ta	La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Dy, Yb, Lu	Th, U	Al	As, Sb	Cl

demais grupos, a minoria deles foi identificada, com exceção dos não-metais poliatômicos (C , P , S , Se) e dos gases-nobres, cujas presenças não foram possíveis de serem determinadas. Os últimos, praticamente ausentes de rochas vulcânicas dada a sua volatilidade. Já os não-metais poliatômicos, pelas seções de choque desprezíveis e meia-vida da ordem de segundos, no caso do carbono; ausência de gamas intensos ou inferiores à 1%, no caso do ^{32}P e do ^{35}S ; abundância desprezível, associado à baixa seção de choque, no caso do ^{37}S (o ^{36}S possui abundância isotópica de apenas 0,01% e seção de choque para captura de nêutrons térmicos de apenas $\sigma = 0,15\text{ b}$); já no caso do Se , provavelmente por não ser abundante também nas rochas vulcânicas, se seguir a abundância na crosta terrestre ($\approx 50\text{ ppb}$), uma vez que o ^{74}Se , apesar de abundância isotópica de apenas 0,89%, possui seção de choque para captura de nêutrons térmicos de $\sigma = 51,8\text{ b}$ e o ^{75}Se possui meia-vida de $T_{1/2} = 119,8\text{ d}$, além inúmeros gamas intensos ($E_\gamma = 400,7\text{ keV}$, $I_\gamma = 11,41\%$; $E_\gamma = 279,5\text{ keV}$, $I_\gamma = 25,02\%$; $E_\gamma = 264,7\text{ keV}$, $I_\gamma = 58,9\%$; $E_\gamma = 136,0\text{ keV}$, $I_\gamma = 58,5\%$). Muitos desses gamas sofrem interferência, como do ^{152}Eu , o que dificulta sua medição. Entretanto, por serem elementos leves ($A \leq 36$, com exceção do Se), poderiam ser facilmente medidos através de espectroscopia de massa ou PIXE.

Foram medidos 33 elementos, dos quais 18 com Z par; 12 com Z ímpar e um isótopo estável (Al , As , Co , Cs , Eu , La , Lu , Mn , Rb , Sc , Ta , Tb); 3 com Z ímpar e dois isótopos estáveis (Cl , K , Sb).

Quanto às incertezas obtidas, nota-se que o método é bastante preciso, com precisão

de até 1 ‰ para meias-vidas longas. Entretanto, para elementos com meia vida-curta (*Al, As, Ca, Dy, K, Mg, Mn, Na, Sm, Ti, U*), as incertezas são muito maiores ($< 30\%$). A principal causa para incertezas tão grandes é a espera de $\approx 30 \text{ min}$ entre a irradiação e a liberação pelo setor de proteção radialógica. Por exemplo, o ^{49}Ca possui meia-vida $T_{1/2} = 8,7 \text{ min}$ e o ^{28}Al meia-vida $T_{1/2} = 2,2 \text{ min}$, logo as medições foram realizadas em condições de baixa estatística se comparada à condição ótima de meia-vida, o que aumentou significativamente as incertezas.

Pode-se também observar que as incertezas para cada amostra, para um dado elemento, são muito semelhantes. Como as condições experimentais, tempo de medida, tempo de irradiação, entre outros, são parecidas, isto indica que o principal fator para a determinação da incerteza é o ajuste do pico. Ou seja, condições locais do fundo intrínseco (*bremsstrahlung*, efeito Compton, interferências), de meia-vida e número de contagens são os principais contribuintes para este efeito. No caso do efeito Compton o máximo da energia espalhada ocorre para os ângulos $\theta = 0$ e $\theta = \pi$, produzindo dois picos largos facilmente identificáveis. Estimando-se a energia dos gamas espalhados pelo efeito Compton para os fotopicos mais intensos, é possível decidir se um pico é um fotopico ou não. Além disso, a largura do pico também é um bom indicador da ocorrência de efeitos de detecção, uma vez que, por exemplo, o contínuo Compton acaba produzindo picos mais largos. Estimar qual deve ser a intensidade relativa entre as bordas Compton para um determinado gama espalhado (usando para isso a fórmula de Klein-Nishima) também indica a ocorrência deste efeito.

A calibração da largura à meia-altura, FWHM, em função do número do canal é uma importante análise para se determinar se um pico é formado por mais de um gama com energia próxima ou se ocorre algum efeito de detecção na mesma faixa de energia, pois nestes casos o pico ficará mais largo. Utilizando um teste estatístico de compatibilidade entre o valor obtido para a FWHM pelo ajuste do pico com o esperado pela calibração de largura pode determinar se um pico é provavelmente formado por

apenas um fotopico. A função usual é $FWHM = (a_0 + a_1x + a_2x^2)^{1/2}$, onde a_i são parâmetros a serem ajustados e x o número do canal.

No caso das terras raras (*La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Sc, Y* e *Pm*, este último não possuindo isótopos estáveis), de interesse especial pelo uso em dispositivos tecnológicos, nota-se uma supressão em amostras do Havá quando comparadas com a abundância da crosta terrestre. Já nos casos de Kilimanjaro e Ruanda, em geral, há valores pouco mais abundantes. Entretanto, dois casos destoam: o *Ce*, cuja abundância na crosta terrestre é de 66,5 *ppm*, enquanto nas amostras de Kilimanjaro 1 e 2 são 272(6) *ppm* e 319(11) *ppm*, respectivamente; o *La*, cuja abundância na amostra Uganda 2 é surpreendentemente de $1,47(10) \cdot 10^3$ *ppm* ante um valor de 39 *ppm* para crosta. Nas demais amostras há uma supressão generalizada por um fator 10 para o *La, Lu* e *Tb*.

É interessante notar que as amostras de Kilimanjaro são muito mais ricas que as demais no que concerne à abundância de elementos traço. Nota-se, assim, que o *Zr* é de 5 à 10 vezes mais abundante que na crosta. O *Ta*, o *Hf* e o *Cs* são 10 vezes mais abundantes. Há também uma maior concentração de *Cl* (10 vezes) e *Na* (3 vezes).

Já no caso do *Co*, as amostras do Havá são 3 vezes mais abundantes que na crosta, enquanto nas do Kilimanjaro seguem a média. Pode-se também notar que a abundância de ferro segue a da crosta, com pequenas supressões, como nas amostras de Kilimanjaro e Equador 2, ou favorecimentos, casos de Islândia 1, basalto indiano e Uganda 1.

No caso do *Ba*, pode-se notar uma supressão por um fator de aproximadamente 10 na amostra do basalto indiano (73 *ppm*) quando comparado à crosta terrestre ($4,25 \cdot 10^2$ *ppm*). Já Uganda 2, Mt. Etna 2 e Ruanda apresentam abundâncias da ordem de $\approx 10^3$ *ppm*. Já para o *Cr*, ele é 10 vezes mais abundante que a crosta, enquanto ambas as amostras de Kilimanjaro apresentam uma supressão por um fator de $\approx 10^3$. Para o *Rb*, há uma supressão da ordem de 10 para o basalto indiano e um favorecimento da mesma ordem para Kilimanjaro 1. Já Ruanda e Uganda são entre 1,5 e 2,5 vezes mais

abundantes, respectivamente.

Para o *Sb* é interessante notar uma supressão por um fator de aproximadamente 5 nas amostras de Kauai e Mt. Etna 2. As amostras de Uganda são favorecidas por um fator de ≈ 10 . Já no caso do *Sr* ambas amostras do Mt. Etna bem como a de Ruanda apresentam um favorecimento de aproximadamente 10.

Por fim, há indicações de uma dependência da abundância de tório e urânio com a profundidade. Na crosta há em torno de 12 *ppm*, enquanto nas amostras do Havaí, entre $\approx 5,5\text{--}11,5$ *ppm*, nas do Kilimanjaro, $\approx 40,0\text{--}45,0$ *ppm*, na de Equador 1, $\approx 3,7(10)$ *ppm*, de Equador 2, $\approx 9(3)$ *ppm*, da Islândia 1, $\approx 4,0(10)$ *ppm*, Islândia 2, $\approx 2,5(10)$ *ppm*, Índia 2, $\approx 6,5(16)$ *ppm*, basalto indiano, $\approx 4,7(10)$ *ppm*, Mt. Etna 1, $\approx 7,6(11)$ *ppm*, Mt. Etna 2, $\approx 9,7(10)$ *ppm*, Ruanda, $\approx 6,9(7)$ *ppm* e Uganda 1 e Uganda 2, $\approx 2,4(10)$ *ppm*. Nota-se, assim, que há indicativos de que, embora a abundância não seja inferior à média esperada de 0,2 *ppm* para compensar os maiores valores na crosta, já há claras indicações de que a abundância de tório e urânio diminui com a profundidade, consistente com a radiação emitida pelo núcleo terrestre.

Como se pode notar, há inúmeras inomogeneidades favorecendo algumas regiões, principalmente a de Kilimanjaro. É de grande interesse estudar o processo pela qual se dá estas inomogeneidades, o que poderá contribuir no desenvolvimento de melhores hipóteses para modelos terrestres de distribuição de tório e urânio e, por conseguinte, de emissão de geoneutrinos. Por exemplo, o Kilimanjaro é um vulcão recente, com aproximadamente 1 milhão de anos, o Kauai, o mais velho dos vulcões do Havaí, tem 5 milhões de anos, enquanto Haleakala por volta de 2 milhões de anos, Mauna Loa, entre 0,7 e 1 milhão de anos e o Kilauea entre 0,3 e 0,6 milhão de anos ([Hawaiian Volcano Observatory, 2010](#); [Nonnotte et al., 2008](#)), de forma que não se pode estabelecer um vínculo entre idade do vulcão com abundância de tório e urânio nas amostras. Também é interessante notar que há indícios de que o Havaí seja formado por uma pluma mantélica, ou seja, há um acúmulo de temperatura e pressão que forma este *hot*

spot, produzindo uma liberação de magma não do manto superior, mas sim direto do manto inferior, de forma que possibilita o estudo indireto da composição de elementos traço de regiões mais profundas da Terra, (Courtillet et al., 2003). É possível que haja alguma corrente magmática no interior da Terra que possa correlacionar temporalmente os dados (Ritsema et al., 1999; Montelli et al., 2004).

Quando comparado ao Sistema Solar, notam-se inúmeras diferenças, caso do *Zr*, *Sr*, *Nd*, *Ce*, *La*, *Lu*, *K*, *Eu*, *Ba*, *Th* e *U*, favorecidos, e *Yb*, *Tb*, *Ta*, *Sm* e *Dy*, suprimidos. É necessário considerar também afinidades químicas e cristalográficas, como entre *Rb* e *Sr*; *Ce* e *La*; *Nd* e *Sm*; *Th* e *U*, de fato verificadas. Os elementos produtores de calor na Terra aparecem favorecidos, em se considerando que na crosta terrestre tório e urânio variam aproximadamente entre 9,4 ppm e 9,8 ppm, na escala cosmológica. No caso das amostras Kilimanjaro $\approx 7,2$ ppm e nos demais < 5 ppm, o que mostra uma diminuição na concentração destes e de acordo com o comparado com a crosta terrestre.

Vale notar que as duas normalizações cosmológicas usuais são as que estabelecem o número de átomos de hidrogênio como $N(H) = 10^{12}$ ou de silício $N(Si) = 10^6$. Como estes dois elementos são inviáveis de serem medidos via nêutrons térmicos, utilizou-se o *Fe* como normalização, de forma que $N(Fe) = 10^{7,46}$, o que faz com que a concentração nas amostras de *Fe* seja a mesma da do Sistema Solar. Como nesta e em amostras magmáticas há maiores concentrações de ferro, utilizar a normalização relativa ao ferro não descarta as comparação qualitativas feitas previamente, principalmente para elementos traço, cujas abundâncias são muito menores que as do ferro.

No que concerne às medições do potássio, é interessante notar que elas fornecem um importante subsídio para se determinar a concentração de argônio na Terra, pois o processo astrofísico de formação de elementos leves, 1.4.1, ocorre nessa região principalmente pela captura de α_s , de forma que o ^{36}Ar é formado em maior quantidade. Entretanto, na Terra há uma maior concentração de ^{40}Ar devido a uma das ramificações do decaimento do ^{40}K (que é muito mais abundante que o argônio, na Terra).

Exemplificando: como o ^{32}S possui uma abundância isotópica de 94,99%, esperar-se-ia que o ^{36}Ar fosse o mais abundante, o que é verificado fora da Terra ([Grimberg et al., 2008](#)). Entretanto, em amostras terrestres o ^{36}Ar possui abundância isotópica de apenas 0,3336%, ante uma abundância isotópica de 99,6035% para o ^{40}Ar . Isso decorre do decaimento do ^{40}K , uma vez que na crosta ele apresenta uma abundância 10^4 vezes maior que o argônio, associada a volatilidade deste. Por exemplo, tome a crosta para exemplificar um cálculo estimado: a massa da crosta é de $2 \cdot 10^{22} \text{ kg}$, sendo que 2% dela é constituída de potássio. Como a meia-vida do argônio é da ordem de grandeza da formação da Terra, em primeira aproximação a proporção da massa de potássio para a massa da crosta é a mesma na Terra primordial. Como a proporção isotópica do ^{40}K é da ordem de 1‰, na Terra inicial havia da ordem de $4 \cdot 10^{17} \text{ kg}$ de ^{40}K ou, considerando que 10,72% decaiu por captura eletrônica, alimentando o ^{40}Ar , $4 \cdot 10^{16} \text{ kg}$ de ^{40}K . Atualmente, há na atmosfera da ordem de 100 mg/m^2 de Ar (ou ^{40}Ar , pois a abundância isotópica é de 99,6%) ou, equivalentemente, $5 \cdot 10^{16} \text{ kg}$ de ^{40}Ar . Dessa forma, quase todo o argônio da crosta terrestre foi para atmosfera. Cálculos mais precisos envolvendo a presença de potássio na crosta, no manto superior e na atmosfera podem estimar a quantidade de argônio no manto.

Outros elementos de interesse não foram medidos. Entre eles, podemos citar o Au , uma vez que o ^{198}Au ($T_{1/2} = 2,7 \text{ d}$), possui um gama $E_\gamma = 411 \text{ keV}$, com intensidade $I_\gamma = 95,62\%$, associado ao fato do ^{197}Au ser o único isótopo estável e possuir uma seção de choque para captura de nêutrons térmicos de $\sigma = 98,7 \text{ b}$. Entretanto, o ^{152}Eu também possui um gama $E_\gamma = 411 \text{ keV}$, com $I_\gamma = 2,24\%$. Apesar da meia-vida $T_{1/2} = 13,5 \text{ a}$, o que faz com que medidas prontamente subsequentes à irradiação otimizem a medição do ouro, por conta da curva de decaimento, a abundância muito maior de európio (por exemplo, na crosta é mais de 1000 vezes mais abundante) impede a determinação dele. Apesar do európio possuir inúmeros gamas em coincidência com o 411 keV , o sistema de anticoincidência não conseguiu suprimir o suficiente para permitir

a determinação de ouro.

Já no caso da prata, via ^{110}Ag , que possui uma meia-vida $T_{1/2} = 249,8\text{ d}$ e inúmeros gamas intensos em baixas e altas-energias, como o $E_\gamma = 1505\text{ keV}$, $I_\gamma = 13,33\%$; $E_\gamma = 1384\text{ keV}$, $I_\gamma = 25,13\%$; $E_\gamma = 937\text{ keV}$, $I_\gamma = 35,0\%$; $E_\gamma = 885\text{ keV}$, $I_\gamma = 75,0\%$ e $E_\gamma = 658\text{ keV}$, $I_\gamma = 95,61\%$; além do ^{109}Ag , com abundância isotópica de 48,2%, possuir seção de choque para captura de nêutrons térmicos $\sigma = 91,12\text{ b}$, não se conseguiu determiná-lo. Todavia, para gamas de menor energia, como o 885 keV, devido a presença próxima de outros gamas com alto número de contagens, como o 889 keV, do ^{46}Sc , torna-se difícil medi-lo conclusivamente. Já para a região de mais alta energia, como o fundo ainda é grande o suficiente para encobrir qualquer pico associado à Ag , não pôde-se também medi-lo conclusivamente. Entretanto, devido à presença de inúmeros gamas coincidentes, como entre o 658 keV com o 1384 keV, a utilização de um sistema de espectroscopia gama em coincidência deve ser sensível para determiná-lo.

É interessante notar que alguns elementos químicos possuem favorecimento ou supressão só para uma amostra obtida na mesma localização geográfica, caso do Cr para Uganda 1, mas não para Uganda 2, enquanto para outras, em geral para Kilimanjaro, ambas amostras possuem resultados consistentes, caso também do Cr para amostras de Kilimanjaro. É de grande importância tentar entender o porquê deste comportamento. Pode ser que amostras colhidas próximas o suficiente acabem tendo a mesma formação e logo, composição; também é possível que, obtidas em localização geograficamente distantes, correspondam a formação geológicas diferentes. Por outro lado é sabido que amostras terrestres são bastante inhomogêneas, tanto no sentido de poderem possuir mais de uma formação geofísica, como de variarem significativamente em elementos traços, apesar da mesma formação. Desta forma, seria interessante compreender se há razões geofísicas para estas discrepâncias.

A teoria mais aceita de formação do Havaí diz que as ilhas principais são formadas

por apenas um canal de lava (*hot spot*). Artigos recentes (Huang et al., 2011) propõe a existência de mais de um, de forma que a ilha principal, 3.2, onde estão Mauna Loa e Kilauea, tem formações geográficas e geoquímicas diferentes. A principal argumentação para esta tese é a análise da razão entre $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$. Como pode ser visto na figura 3.3, análise da concentração de ferro apresenta dois padrões diferentes, um da ilha principal, cujos valores são compatíveis com sua média com $z_{\text{crít.}} < 3,5$, outro nas ilhas do norte, compatíveis com sua média com $z_{\text{crít.}} < 1,5$. Por esta análise é possível supor que as ilhas menores ao norte podem possuir formação distinta, mas não é possível distinguir Mauna Loa de Kilauea conclusivamente. Entretanto, para $z_{\text{crít.}} < 3,0$, o que estabelece 95% de chance dos z estarem entre 0 e $z_{\text{crít.}}$, a hipótese seria rejeitada. Esta discrepância nos dados da ilha principal podem fornecer um indicativo da hipótese de dois veios de lava para a formação da ilha principal do Havaí.

Por fim, não foi possível medir a abundância de irídio nas amostras. Assim, estimou-se o limite máximo de detecção nelas, obtendo-se valores inferiores a 0,7 *ppb*. Desta maneira, a análise de irídio nas rochas vulcânicas analisadas não é compatível com a hipótese de extinção dos dinossauros por atividades vulcânicas. Entretanto, cabe lembrar que são necessárias mais análises em rochas vulcânicas para se ter um resultado conclusivo.

Figura 3.2: Mapa do Havaí mostrando onde as amostras foram coletadas (Google, 2014, Adaptado).

Figura 3.3: Concentração de ferro nas amostras do Havaí. Pode-se notar duas concentrações bastante distintas. Devido à discrepância nas amostras de Mauna Loa e Kilauea não é possível rechaçar a hipótese de dois veios distintos de lava atuarem na formação da ilha principal do Havaí.

Capítulo 4

Conclusão

Neste trabalho, foram feitas medidas de espectroscopia γ simples, em coincidência $\gamma - \gamma$ e em anti-coincidência em 17 amostras de rochas vulcânicas ativadas por nêutrons térmicos com o objetivo de se determinar os elementos traço presentes. Foram determinadas as concentrações de 33 elementos (*Al, As, Ba, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Dy, Eu, Fe, Hf, K, La, Lu, Mg, Mn, Na, Nd, Sb, Sc, Sm, Sr, Ta, Tb, Th, Ti, U, Yb, Zn e Zr*), dos quais 21 eram elementos traço. Incluiu-se no cálculo de abundância a subtração de interferências, como efeitos de detecção, isótopos sendo alimentados por mais de um canal de reação, caso da fissão, ou diferentes isótopos emitindo γ_s com energias próximas o suficiente para não serem diferenciadas pelo arranjo experimental. Nestes casos, utilizou-se métodos estatísticos que levam em conta todas as informações disponíveis sobre as covariâncias envolvidas, apêndice [A](#).

Não foi possível determinar a concentração de irídio nas amostras. Calculou-se o limite máximo de detecção para elas, apêndice [B](#), tendo sido obtido um valor máximo de 0,7 ppb. A utilização de processos radioquímicos associados à coincidência $\gamma - \gamma$ podem aumentar a sensibilidade de medição ([Alvarez et al., 1980](#)).

As análises sobre a formação do Havaí (através da abundância de ferro nas diferentes ilhas) não foi conclusiva. Novas medições podem permitir um estudo mais aprofundado.

Novas análise da composição isotópica de chumbo podem fornecer mais informações para elucidar esta questão.

Medições de tório e urânio indicaram concentrações deles inferiores a presente na crosta terrestre, com exceção de Kilimanjaro. Assim, há indicações da presença de tório e urânio consistentes com o calor emitido pela Terra. A sistematização desta medidas em outras rochas vulcânicas podem fornecer um análise mais conclusiva. Neste sentido, torna-se interessante a análise de *hot spots* e vulcões marinhos pois suas lavas vem de regiões mais profundas.

Alguns elementos traço não foram medidos, com destaque para ouro e prata. No caso da prata, medidas em coincidência podem tornar viável sua medição. No caso do ouro a utilização de química para supressão do európio pode permitir sua detecção. Espectroscopia de massa e PIXE permitiram a detecção de outros elementos. Processos radioquímicos e químicos associados a ativação por nêutron térmicos podem permitir a medição de novos elementos. Desta forma, destaca-se a utilização de química para supressão de sódio. O ^{24}Na possui um gama de alta energia (2754 keV) e mostrou-se abundante nas amostras, de forma que aumentou o fundo intrínseco delas. Sua supressão aumentaria a sensibilidade de medição para isótopos com meia-vida curta.

Referências Bibliográficas

- Aiuppa, A., Allard, P., D'Alessandro, W., Michel, A., Parello, F., Treuil, M., and Valenza, M. (2000). Mobility and fluxes of major, minor and trace metals during basalt weathering and groundwater transport at Mt. Etna volcano (Sicily). *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64(11):1827 – 1841.
- Alvarez, L. W., Alvarez, W., Asaro, F., and Michel, H. V. (1980). Extraterrestrial Cause for the Cretaceous-Tertiary Extinction. *Science*, 208(4448):1095–1108.
- Bethe, H. A. (1939). Energy Production in Stars. *Physical Review*, 55:434–456.
- Bourdon, E., Eissen, J.-P., Monzier, M., Robin, C., Martin, H., Cotten, J., and Hall, M. L. (2002). Adakite-like Lavas from Antisana Volcano (Ecuador): Evidence for Slab Melt Metasomatism Beneath Andean Northern Volcanic Zone. *Journal Petrology*, 43(2):199 – 217.
- Burbidge, E. M., Burbidge, G. R., Fowler, W. A., and Hoyle, F. (1957). Synthesis of the Elements in Stars. *Rev. Mod. Phys.*, 29:547–650.
- Clayton, D. D. (1984). *Principles of Stellar Evolution and Nucleosynthesis*. University of Chicago Press.
- Courtillot, V., Davaille, A., Besse, J., and Stock, J. (2003). Three distinct types of hotspots in the Earth's mantle. *Earth and Planetary Science Letters*, 205(3–4):295 – 308.

- Enomoto, S. (2005). *Neutrino Geophysics and Observation of Geo-Neutrinos at Kam-LAND*. PhD thesis, Tohoku University. Available at: <http://kamland.lbl.gov/Dissertations/EnomotoSanshiro-DoctorThesis.pdf>.
- Farnetani, C. G. and Hofmann, A. W. (2009). Dynamics and internal structure of a lower mantle plume conduit. *Earth and Planetary Science Letters*, 282(1–4):314 – 322.
- Goldschmidt, V. M. (1937). The principles of distribution of chemical elements in minerals and rocks. The seventh Hugo Müller Lecture, delivered before the Chemical Society on March 17th, 1937. *Journal of the Chemical Society (Resumed)*, pages 655–673.
- Google (2014). Google Maps.
- Gouffon, P. (1987). *Manual do programa IDEFIX*. Instituto de Física da Universidade de São Paulo, Laboratório do Acelerador Linear, São Paulo.
- Grimberg, A., Baur, H., Bühler, F., Bochsler, P., and Wieler, R. (2008). Solar wind helium, neon, and argon isotopic and elemental composition: Data from the metallic glass flown on NASA’s Genesis mission. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72:626–645.
- Hatsukawa, Y., Osawa, T., Oshima, M., Toh, Y., Kimura, A., Koizumi, M., and Furutaka, K. (2012). Measurements of Ir concentration in geological standard samples using neutron activation analysis with multiple gamma-ray coincidence method. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 291:143–145.
- Hawaiian Volcano Observatory (2010). US Geological Survey Hawaiian Volcano Observatory. Available at: <http://hvo.wr.usgs.gov>.

- Helene, O. (1983). Upper limit of peak area. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*, 212(1–3):319 – 322.
- Hofmeister, A. M. and Criss, R. E. (2005). Earth’s heat flux revised and linked to chemistry. *Tectonophysics*, 395:159–177.
- Huang, S., Hall, P. S., and Jackson, M. G. (2011). Geochemical zoning of volcanic chains associated with Pacific hotspots. *Nature Geoscience*, 4:874–878.
- Huang, Y., Chubakov, V., Mantovani, F., Rudnick, R. L., and McDonough, W. F. (2013). A reference Earth model for the heat producing elements and associated geoneutrino flux.
- Jackson, I. (1998). *The Earth’s Mantle: Composition, Structure, and Evolution*. Cambridge University Press.
- Jeffries, T., Perkins, W., and Pearce, N. (1995). Measurements of trace elements in basalts and their phenocrysts by laser probe microanalysis inductively coupled plasma mass spectrometry (LPMA-ICP-MS). *Chemical Geology*, 121(1–4):131 – 144.
- Keays, R. R., Ganapathy, R., Laul, J., Krähenbühl, U., and Morgan, J. W. (1974). The simultaneous determination of 20 trace elements in terrestrial, lunar and meteoritic material by radiochemical neutron activation analysis. *Analytica Chimica Acta*, 72(1):1 – 29.
- Krane, K. S. (1987). *Introductory Nuclear Physics*. Wiley, 3rd edition.
- Lide, D. R. (2009). *CRC Handbook of Chemistry & Physics*. CRC Press, 90th edition.
- LNHP (2014). Laboratoire National Henri Poincaré (LNHP).
- Lodders, K. (2010). Solar System Abundances of the Elements. In Goswami, A. and Reddy, B. E., editors, *Principles and Perspectives in Cosmochemistry*, Astrophysics

- and Space Science Proceedings, pages 379–417. Springer Berlin Heidelberg. Available at: <http://arxiv.org/abs/1010.2746>.
- Montelli, R., Nolet, G., Dahlen, F. A., Masters, G., Engdahl, E. R., and Hung, S.-H. (2004). Finite-Frequency Tomography Reveals a Variety of Plumes in the Mantle. *Science*, 303(5656):338–343.
- NNDC (2014). National Nuclear Data Center (NuDat).
- Nonnotte, P., Guillou, H., Gall, B. L., Benoit, M., Cotten, J., and Scaillet, S. (2008). New K–Ar age determinations of Kilimanjaro volcano in the North Tanzanian diverging rift, East Africa. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 173(1–2):99 – 112.
- Norman, M., Garcia, M. O., and Pietruszka, A. J. (2005). Trace-element distribution coefficients for pyroxenes, plagioclase, and olivine in evolved tholeiites from the 1955 eruption of Kilauea Volcano, Hawai’i, and petrogenesis of differentiated rift-zone lavas. *American Mineralogist*, 90(5 - 6):888 – 899.
- Perlman, I. and Asaro, F. (1969). Pottery Analysis by Neutron Activation. *Archaeometry*, 11:21–52.
- Pollack, H. N., Hurter, S. J., and Johnson, J. R. (1993). Heat flow from the Earth’s interior: Analysis of the global data set. *Reviews of Geophysics*, 31:267–288.
- Regan, P. H. (2006). Level III Nuclear Astrophysics. [Online; accessed 09-Maio-2014].
- Renne, P. (2013). personal communication.
- Ritsema, J., van Heijst, H. J., and H, W. J. (1999). Complex Shear Wave Velocity Structure Imaged Beneath Africa and Iceland. *Science*, 286(5446):1925 – 1928.

- Rogers, N. W., James, D., Kelley, S. P., and Mulder, M. D. (1999). The Generation of Potassic Lavas from the Eastern Virunga Province, Rwanda. *Journal Petrology*, 39(6):1223 – 1247.
- Sceal, J. and Weaver, S. (1971). Trace element data bearing on the origin of salic rocks from the Quaternary volcano Paka, Gregory Rift, Kenya. *Earth and Planetary Science Letters*, 12(3):327 – 331.
- Smith, A. R., McDonald, R. J., Manini, H., Hurley, D. L., Norman, E. B., Vella, M. C., and Odom, R. W. (1996). Low-Background Instrumental Neutron Activation Analysis of Silicon Semiconductor Materials. *Journal of The Electrochemical Society*, 143(1):339 – 346.
- Vanin, V. R. and Gouffon, P. and Helene, O. (2012). Análise Estatística de Medidas em Ciências Exatas. [Notas de aula].
- Voldet, P. (1982). Determination of the rare-earth elements in basic rocks by neutron activation and high-resolution X-ray or γ -ray spectrometry. *TrAC Trends in Analytical Chemistry*, 1(11):262 – 267.
- Wigner, E. P. (1949). Nuclear Reactions and Level Widths. *American Association of Physics*, 17:99–109.
- Wikimedia Commons (2010). Solar System Abundances. Available at: <http://commons.wikimedia.org/wiki/File%3aSolarSystemAbundances.jpg>.
- Wolfram Research, I. (2012). Mathematica.
- Wood, D. A., Joron, J.-L., and Treuil, M. (1979). A re-appraisal of the use of trace elements to classify and discriminate between magma series erupted in different tectonic settings. *Earth and Planetary Science Letters*, 45(2):326 – 336.

- Zajzon, N., Molnár, Z., and Weiszbürg, T. G. (2012). Ppt range iridium determination by RNAA and application of that method on a Permian/Triassic boundary section. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 291:579–586.

Apêndice A

Determinação das Incertezas das Abundâncias

A propagação de incertezas requer especial atenção, uma vez que valores de função em pontos distintos apresentam correlação. Neste apêndice discutir-se-á algumas propagações de incertezas do cálculo de abundância. Será dada ênfase na correlação existente na determinação da abundância de elemento cuja contagem total sofre interferência de outro fotopico. Entretanto, verificou-se que a correlação contribui, em geral, com menos de 1% da incerteza e, por isso, pode-se desprezá-la.

A.1 Variância de funções de várias variáveis aleatórias co-variantes

Considere uma função $m_i \equiv m_i(\mathbf{x})$, $\mathbf{x} \equiv x_1, x_2, \dots, x_n$, i funções de n variáveis. A matriz de covariância de m_i , $\mathbf{V}_m$, será, pois,

$$\mathbf{V}_m \cong \mathbf{D} \cdot \mathbf{V}_x \cdot \mathbf{D}^t \quad (\text{A.1})$$

onde a matrix $\mathbf{D}$ é definida como

$$D_{i,j} = \left. \frac{\partial m_i}{\partial x_j} \right|_x \quad (\text{A.2})$$

Considere a função abundância (eq. 2.7), dada por

$$m = \frac{C M \lambda e^{-\lambda t_0}}{0,602 I \varepsilon \Phi \sigma (1 - e^{-\lambda t_{irr.}})(1 - e^{-\lambda \Delta t})} \left(\frac{\Delta t}{\Delta t_{vivo}} \right)^{-1} = \mathcal{K} \frac{C}{\Phi \varepsilon} \quad (\text{A.3})$$

onde $\mathcal{K}$ é um termo constante, no sentido de possuir incerteza desprezível. As incertezas nos parâmetros disponíveis na Literatura (intensidade, meia-vida, seção de choque, massa atômica) e no tempo, são muito menores do que a incertezas do aparato experimental, a saber, a contagem C , o fluxo Φ e a eficiência ε .

Desprezando a correlação entre estes três parâmetros (a rigor, como Φ também é calculado por 2.7 há uma correlação entre a eficiência e o fluxo, entretanto muito menor que a incerteza dos outros parâmetros), tem-se que:

$$\sigma_{m^2} = \begin{pmatrix} \frac{\mathcal{K}}{\Phi \varepsilon} & -\frac{\mathcal{K}C}{\Phi \varepsilon^2} & \frac{\mathcal{K}C}{\Phi^2 \varepsilon} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_C^2 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_\varepsilon^2 & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_\Phi^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\mathcal{K}}{\Phi \varepsilon} \\ -\frac{\mathcal{K}C}{\Phi \varepsilon^2} \\ \frac{\mathcal{K}C}{\Phi^2 \varepsilon} \end{pmatrix} = \frac{\mathcal{K}^2}{\Phi^2 \varepsilon^2} \sigma_C^2 + \frac{\mathcal{K}^2 C^2}{\Phi^2 \varepsilon^4} \sigma_\varepsilon^2 + \frac{\mathcal{K}^2 C^2}{\Phi^4 \varepsilon^2} \sigma_\Phi^2$$

Já no caso em que o pico é resultado de $(n + 1)$ picos de elementos distintos, sem perda de generalidade, sendo que a concentração de n elementos já fora previamente determinada, por hipótese, deve-se subtrair da contagem total a soma dos n picos a fim de se determinar a concentração de $(n + 1) - \text{ésimo}$ pico. Nesse caso deve incluir esta

subtração em A.3 e, portanto, a massa será dada por

$$m = \frac{(C - C')}{0,602} \frac{I \varepsilon \Phi \sigma}{\Phi \sigma} \frac{M \lambda e^{-\lambda t_0}}{(1 - e^{-\lambda t_{irr.}})(1 - e^{-\lambda \Delta t})} \frac{\Delta t}{\Delta t_{vivo}} = \mathcal{K}' \frac{(C - C')}{\Phi \varepsilon} \quad (\text{A.4})$$

onde $C' = \sum_i C_i$, C_i é a área do pico devido ao gamma i .

Nesse caso, a incerteza na concentração será, pois,

$$\begin{aligned} \sigma_m^2 = \mathcal{K}'^2 \left\{ \left[\frac{-C'}{\Phi \varepsilon} \right]^2 \sigma_C^2 + \left[\frac{C}{\Phi \varepsilon} \right]^2 \sigma_{C'}^2 + \left[\frac{-(C - C')}{\Phi \varepsilon^2} \right]^2 \sigma_\varepsilon^2 + \left[\frac{-(C - C')}{\Phi^2 \varepsilon} \right]^2 \sigma_\Phi^2 \right\} + \\ + 2 \left(\frac{\partial m}{\partial C'} \right) \left(\frac{\partial m}{\partial \Phi} \right) \text{cov}(C', \Phi) + 2 \left(\frac{\partial m}{\partial C'} \right) \left(\frac{\partial m}{\partial \varepsilon} \right) \text{cov}(C', \varepsilon) \quad (\text{A.5}) \end{aligned}$$

onde

$$\begin{aligned} \text{cov}(C', \varepsilon) = \left(\frac{\partial \vec{C}'}{\partial x_i} \right)^t \mathbf{V}_y \left(\frac{\partial \vec{\varepsilon}}{\partial x_i} \right) = \mathcal{R} \begin{pmatrix} \varepsilon & \Phi \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_\varepsilon^2 & 0 \\ 0 & \sigma_\Phi^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \\ = \mathcal{R} \varepsilon \sigma_\varepsilon^2 \quad (\text{A.6}) \end{aligned}$$

e

$$\begin{aligned} \text{cov}(C', \Phi) = \left(\frac{\partial \vec{C}'}{\partial x_i} \right)^t \mathbf{V}_y \left(\frac{\partial \vec{\varepsilon}}{\partial x_i} \right) = \mathcal{R} \begin{pmatrix} \varepsilon & \Phi \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_\varepsilon^2 & 0 \\ 0 & \sigma_\Phi^2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} \\ = \mathcal{R} \Phi \sigma_\Phi^2 \quad (\text{A.7}) \end{aligned}$$

em que se considerou que

$$C' = \sum_i C_i = \frac{0,602 \, \varepsilon \, \Phi \, (1 - e^{-\lambda t_{irr.}}) (1 - e^{-\lambda \Delta t})}{(M \, \lambda \, e^{-\lambda t_0})} \left(\sum_i \sigma_i m_i I_i \right) = \mathcal{R} \Phi \varepsilon \quad (\text{A.8})$$

Por fim, deve-se calcular a incerteza em C' , $\sigma_{C'}$:

$$\sigma_{C'}^2 = \sum_i \sigma_{C_i}^2 + \sum_i \sum_{j \neq i} \left(\frac{\partial C'}{\partial C_i} \right) \left(\frac{\partial C'}{\partial C_j} \right) \text{cov}(C_i, C_j) = \text{Tot}(\mathbf{V}_{C'}) \quad (\text{A.9})$$

onde $\text{Tot}(\mathbf{V}_{C'})$ é o total da matriz de covariância, ou seja, a soma de todos os seus elementos.

E,

$$\begin{aligned} \text{cov}(C_i, C_j) \Big|_{i \neq j} &= \left(\frac{\partial \vec{C}_i}{\partial x_k} \right) \mathbf{V}_C \left(\frac{\partial \vec{C}_j}{\partial x_k} \right) = \mathcal{R}_i \begin{pmatrix} \Phi & \varepsilon \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sigma_\Phi^2 & 0 \\ 0 & \sigma_\varepsilon^2 \end{pmatrix} \mathcal{R}_j \begin{pmatrix} \Phi \\ \varepsilon \end{pmatrix} \\ &= \mathcal{R}_i \mathcal{R}_j (\sigma_\Phi^2 \Phi^2 + \sigma_\varepsilon^2 \varepsilon^2) \quad (\text{A.10}) \end{aligned}$$

Apêndice B

Limites de Detecção

Considere uma medida de espectroscopia gama que não permite a identificação de um pico de interesse. Nesse caso **não** se pode afirmar sobre a inexistência do pico, mas somente que ele é menor ou igual à flutuação estatística do fundo já que, sem informação, sempre haverá uma significância α não nula de existência do pico, o que permite, com algumas hipóteses que serão vistas mais abaixo, obter um valor para α .

Existem dois critérios principais que podem ser utilizados para extrair alguma informação sobre a significância de existência do pico, a saber, o limite crítico de detecção e o limite máximo de detecção ([Helene, 1983](#)).

B.1 Limite Crítico de Detecção

Considere um fundo com B contagens. Como ele segue a distribuição de Poisson, sua incerteza será dada por

$$\sigma_B = \sqrt{B}$$

De forma que, dada uma significância α com $t_{crit.}$ correspondente, pode-se dizer que só se medirá o pico de interesse, *com segurança*, se o número total de contagens C total for

$$C > B + t_{crit.} \sqrt{B}$$

Se houver um número grande de contagens, pelo Teorema Central do Limite, os picos terão um comportamento gaussiano. Então, por exemplo, há 68% de chance que determinada contagem esteja dentro do intervalo $\pm\sqrt{B}$, de forma que poder-se-ia estabelecer como critério que uma contagem da ordem $C > B + \sqrt{B}$, $t_{crit.} = 1$ indicaria a existência do pico de interesse com a significância de 68% estabelecida. Este critério é muito útil para saber se deve-se ou não realizar determinar medição, dada a precisão do aparelho e o fundo conhecidos. Também permite estabelecer uma ordem de grandeza para a redução do fundo, se for possível suprimi-lo de alguma maneira, através de filtros, química, coincidência etc. à fim de se evidenciar determinado pico. É por isso que é classificado como uma abordagem *a priori*.

B.2 Limite Máximo de Detecção

Aqui será adotada uma abordagem *a posteriori*, utilizando para isto o critério de **limite máximo de detecção**. *A posteriori* no sentido de se obter algum resultado possível para sobre o número de contagens de determinado pico utilizando-se para isto deduções estatísticas, uma vez que a medida já foi realizada e não se obteve o resultado esperado.

Assim, considere que os valores médios para a área de um pico e para o fundo sejam dados por a e B , respectivamente. É de interesse obter uma significância α de que a área do pico será maior do que um certo valor ou uma significância $(1 - \alpha)$ de que será inferior. Como eles seguem a distribuição de Poisson, a probabilidade de se obter C contagens será, pois,

$$P(C) = \frac{e^{-(a+B)}(a+B)^C}{C!} \quad (\text{B.1})$$

Entretanto, é mais interessante estudar a função densidade de probabilidade (f.d.p.), $g(a|\{B,C\})$, ou seja, uma abordagem bayesiana. É claro, que

$$g(a) = N_1 \frac{e^{-(a+B)}(a+B)^C}{C!} \quad (\text{B.2})$$

Uma vez que é razoável que os dois resultados sejam proporcionais. N_1 é a constante de normalização. Basicamente dentre as três variáveis a , B , C , podemos fixar duas e deixar uma livre e, assim, temos a f.d.p. de interesse a menos de um fator de normalização que virá exigindo-se que a soma sobre todas as configurações possíveis da variável livre seja 1.

Pelo Teorema Central do Limite, para um número de contagens C muito grande, pode-se considerar a aproximação gaussiana, i.e.,

$$g(a) \cong N_2 \frac{e^{-(a+\bar{a})^2/2C}}{\sqrt{2\pi C}} \quad (\text{B.3})$$

onde N_2 é outra constante normalização e $\bar{a} = C - B$.

Mas considere agora que nem o fundo nem sua incerteza são plenamente conhecidos, apenas sua f.d.p. Nesse caso, o correto é somar sobre o total das configurações de fundo, i.e.,

$$g(a) = N_3 \int_0^\infty \frac{e^{-(a+B)}(a+B)^C}{C!} f(B) dB \quad (\text{B.4})$$

Que nada mais é do que considerar qual a probabilidade de fundo ter certo valor e somando-se sobre todas as configurações possíveis, de forma que, se $f(B)$ for gaussiana, em primeira ordem, ter-se-á:

$$g(a) \cong N_3 \frac{e^{-(a+\bar{a})^2/2\sigma}}{\sqrt{2\pi}\sigma} \quad (\text{B.5})$$

com $\bar{a} = C - B_0$, $\sigma^2 = \sigma_B^2 + C$ e N_3 uma constante de normalização. Este resultado já era esperado, já que pelo Teorema Central do Limite deve-se ter uma f.d.p. gaussiana para um número de contagens muito grande.

Assim, conhecendo $\bar{a}$ através de uma calibração de energia, σ através de um ajuste de *FWHM* em função do canal, o fundo B_0 e forçando um ajuste na região de interesse, pode-se obter a f.d.p. associada à a .

Após isso, fixa-se uma significância α de interesse e obtém-se um resultado para o número de contagens do pico. Ou seja, pode-se dizer que há uma probabilidade α do total de contagens ser superior ao limite máximo determinado.

B.2.1 Mais de um Pico de Interesse

Em muitas situações é mais interessante analisar o limite máximo de detecção de duas linhas gama principais, a_1 e a_2 , respectivamente. Assim, a f.d.p. dos dois resultados, que nada mais seria do que uma média entre eles, é dada pela f.d.p. de cada uma.

Dessa forma, considere que o número de núcleos formados seja dado por

$$n = \frac{a_i}{\epsilon_i \cdot I_i} \Rightarrow \frac{d}{da_i} n = \frac{1}{\epsilon_i \cdot I_i}$$

onde I_i é a intensidade de cada linha, ϵ_i a eficiência na região da linha gama e a_i o número de contagens associado ao pico medido. Desta maneira, a f.d.p. conjunta dos picos será, pois,

$$g(n) = \prod_{i=1}^{\mu} \frac{1}{\epsilon_i \cdot I_i} g_i(n/(\epsilon_i \cdot I_i)) \quad (\text{B.6})$$

Com g_i a f.d.p de cada linha gama.

Dessa maneira, a significância será, pois,

$$\alpha = \int_{c_{crit.}}^{\infty} g(x) dx \quad (\text{B.7})$$