

Universidade Estadual de Campinas
Instituto de Física Gleb Wataghin

Estudos de “annealing” de traços de fissão em muscovita

Aluno: Leandro Marcondes Maino
Orientador: Sandro Guedes de Oliveira



Campinas – SP
15 de junho de 2009.
F590 – Iniciação Científica I

Resumo

Neste projeto, o objetivo principal é realizar uma análise experimental de caráter exploratório sobre o uso das micas muscovitas com o TTF para poder traçar no futuro um projeto com experimentos de annealing em traços de fissão confinados neste mineral.

Para o cumprimento do proposto acima, uma série de eventos foi realizada, onde as micas foram selecionadas e inseridas em um forno para serem aquecidas a diferentes temperaturas por diferentes períodos de tempo. Após este eventos, as mesmas foram submetidas a um mesmo ataque químico e então levadas para análise microscópica, onde seus traços foram medidos e estudados.

Com estes dados, foi possível obter uma idéia da taxa de annealing do mineral em questão e assim planejar o estudo de algumas áreas a serem melhor exploradas.

Introdução

Vidros e minerais naturais contém urânio, em concentrações da ordem de ppm, como impureza na sua composição química. O isótopo ^{238}U se fissiona espontaneamente, com uma meia-vida de $\sim 8,2 \cdot 10^{15}$ a (Galliker et al., 1970; Guedes et al., 2000; Guedes et al., 2003a; Guedes et al., 2003b; Hadler et al., 1981; Yoshioka et al., 2005), liberando fragmentos com energias de aproximadamente 70 e 100 MeV, respectivamente para os fragmentos leve e pesado. A interação dos fragmentos com a rede do material faz surgir uma região modificada, com simetria cilíndrica, ao longo da trajetória do traço chamada de traço latente. Esta região é quimicamente mais reativa e, se uma superfície polida do mineral em estudo é tratada com reagente apropriado, formam-se canais nas regiões onde os traços latentes cruzam a superfície, que podem ser observados ao microscópio óptico comum. A estes canais dá-se o nome de traço de fissão e a densidade destes traços fornece uma medida do intervalo de tempo em que os traços latentes estão sendo retidos no mineral. Este é o princípio da Datação por Traços de Fissão (Wagner and Vanden-haute, 1992).

Ocorre que os traços latentes são instáveis termicamente. Devido à ação da temperatura, há uma reconstituição parcial da rede modificada, que pode ser observada como o encurtamento do traço de fissão. Às condições de tempo e temperatura que causam esta reconstituição parcial da rede dá-se o nome de Zona de “Annealing” Parcial,

PAZ. Se a temperatura é suficientemente alta, a rede é completamente reconstituída, de forma que o traço não é mais observado. Neste caso, ocorre o “annealing” total. Estas propriedades fazem com que seja possível estudar a história térmica dos minerais através da medida da distribuição de comprimentos de traços, se a cinética de “annealing” é conhecida. A melhor medida para o comprimento do traço é comprimento do traço de fissão confinado (inteiramente contido no volume do material), paralelo à superfície de observação, porque neste caso o traço pode ter o seu comprimento inteiramente medido. A Termocronologia por Traços de Fissão, TTF, é o estudo conjunto da idade e da história térmica do mineral (Donelick et al., 2005; Reiners et al., 2005; Tagami and O'Sullivan, 2005).

A TTF tem sido aplicada principalmente à apatita (Donelick et al., 2005) e zircão (Tagami and O'Sullivan, 2005), mas a aplicação ao epídoto (Curvo et al., 2005; Curvo et al., 2007) e titanita (Boztug et al., 2007) tem sido considerada ultimamente. A mica muscovita, que já foi objeto de datação nos primeiros anos de desenvolvimento do método dos traços de fissão (Garzonru and Fernande, 1974; Metha and Rama, 1976), não é usada na TTF porque a quantidade de urânio presente neste mineral é muito baixa, e mesmo em amostras mais antigas não é comum encontrar traços confinados. Recentemente, porém, pesquisadores têm apresentado trabalhos nos quais minerais são irradiados com íons pesados em aceleradores (Jonckheere et al., 2007; Min et al., 2007). Os traços deixados pelos íons servem como canais para levar o reagente até os traços confinados, aumentando a probabilidade de se atacar tais traços. Isto faz que os traços confinados em minerais como a mica possam ser observados. A Figura 1 mostra um traço confinado em uma muscovita irradiada com ^{78}Kr no Gesellschaft für Schwerionenforschung, GSI, em Darmstadt. O uso da muscovita para TTF abre novas possibilidades porque as temperaturas necessárias para encurtar os traços são mais altas que as necessárias para os minerais normalmente utilizados. Assim, sistemas geológicos mais antigos poderiam ser estudados por esta técnica, que tornaria possível também estudar processos geológicos que ocorrem em temperaturas mais altas.

Estudos de “annealing” de traços de fragmentos de fissão (Belyaev et al., 1982; Lal and Nagpaul, 1975; Metha and Rama, 1969) e de íons com energias mais altas (Dartyge, 1978; Khan et al., 1984; Sandhu et al., 1989; Singh et al., 1989; Tung et al., 1997) foram realizados com o objetivo de estudar anisotropia na mica ou comparar efeitos da interação de diferentes íons com a rede da muscovita.

Neste caso, foi realizada uma análise experimental de caráter exploratório sobre as possibilidades do uso de TTF em micas muscovitas onde foi verificada a faixa de tempo e temperatura em que ocorre o “annealing” parcial, que servirá para planejar futuros experimentos de “annealing” em traços de fissão confinados em muscovita.

Método Experimental

As amostras utilizadas no experimentos de “annealing” foram tiradas de uma placa de mica muscovita, $\text{KA}_2(\text{Si}_3\text{Al})\text{O}_{10}(\text{OH},\text{F})_2$, irradiada com ^{78}Kr , no GSI em Darmstadt. Os íons foram acelerados até a energia de 865 MeV (11,1 MeV/n). Para simular aproximadamente a energia dos fragmentos de fissão, a placa de mica foi coberta com uma folha de alumínio de 60 μm de espessura. Desta forma, os íons chegaram à superfície da mica com energias de 220,9 MeV (2,8 MeV/n) e 57,4 MeV (0,7 MeV/n), respectivamente para ângulos de incidência de 30 e 45° em relação à normal. As energias são diferentes porque os íons que chegam à superfície da folha de alumínio com ângulos diferentes, atravessam diferentes distâncias no alumínio antes de chegar à superfície da mica. A Figura 1 mostra o esquema da irradiação.

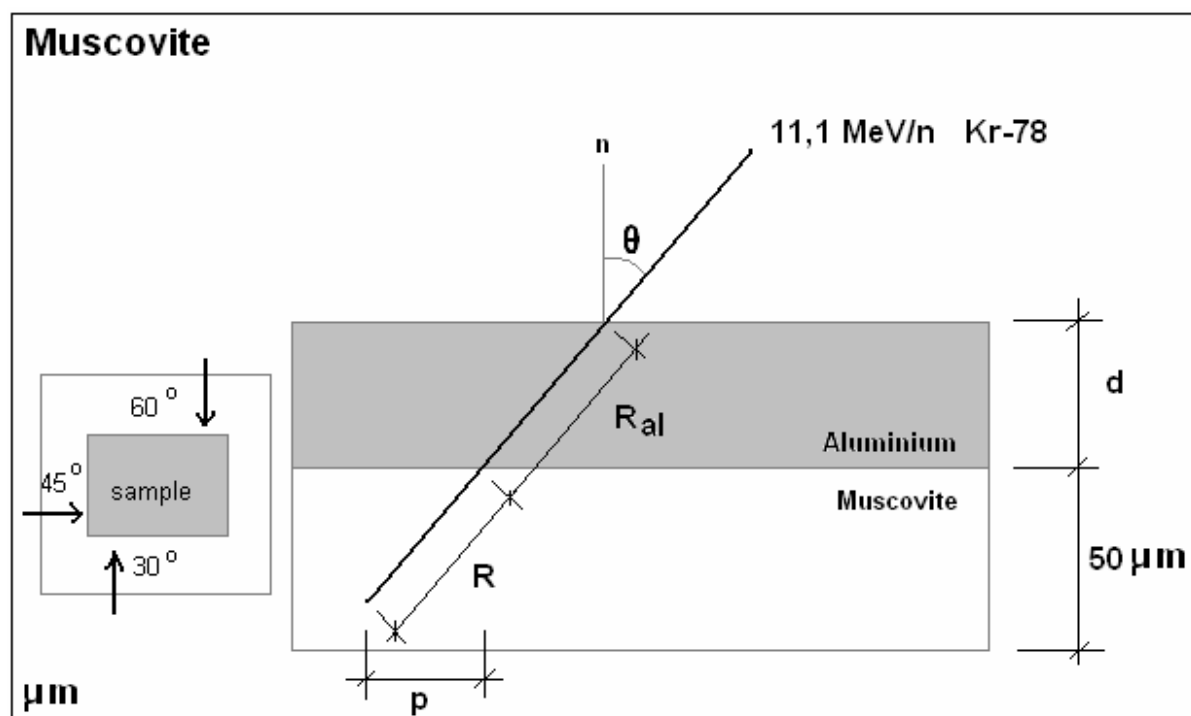


Figura 1 – Esquema de irradiação na muscovita com ^{78}Kr .

As amostras foram cortadas e tratadas termicamente em um forno tubular (Figura 2). Os fornos são cilíndricos com 80 cm de comprimento e 40 cm de diâmetro e suas câmaras cilíndricas possuem 5 cm de diâmetro. As resistências elétricas são de Nichrome 80 e estão enroladas nas câmaras cilíndricas. Elas tem cerca de 10 m de comprimento, possuem resistividade elétrica de $2,7 \Omega \cdot m^{-1}$ e estão conectadas a uma diferença de potencial de 220 V, gerando aproximadamente 1800 W de potência. Entre a casca de aço inox e a parte externa, os fornos são preenchidos com isolante térmico (manta de rocha). As câmaras cilíndricas criam uma simetria radial no gradiente de temperatura e ao longo do comprimento o que permite uma área maior com temperatura estável. Além disso, os porta-amostras de aço inox, com cerca de 1kg, ajudam a estabilizar a temperatura. Eles possuem um volume útil de 27 cm^3 , diminuindo a convecção do ar próximo às amostras. O fato de serem de aço inox aumenta a velocidade de distribuição de temperatura, diminuindo seu gradiente. Como possuem uma grande capacidade calorífica, a variação de temperatura deles é mais lenta.

As temperaturas são controladas por um Controlador Universal de Processos N1100 ligado a termopares tipo K. Os termopares foram calibrados a partir de um termopar calibrado pelo Inmetro. Existem dois termopares por forno, um para o controle da temperatura e outro dentro do porta-amostra (junto às amostras). Os dados destes termopares são guardados em um *data logger* conectado a um *no-break* para controlar a variação da temperatura dos fornos em caso de quedas de energia na rede elétrica de até 4 horas. A acúrcia das medidas de temperaturas pelos termopares são menores que 1°C .

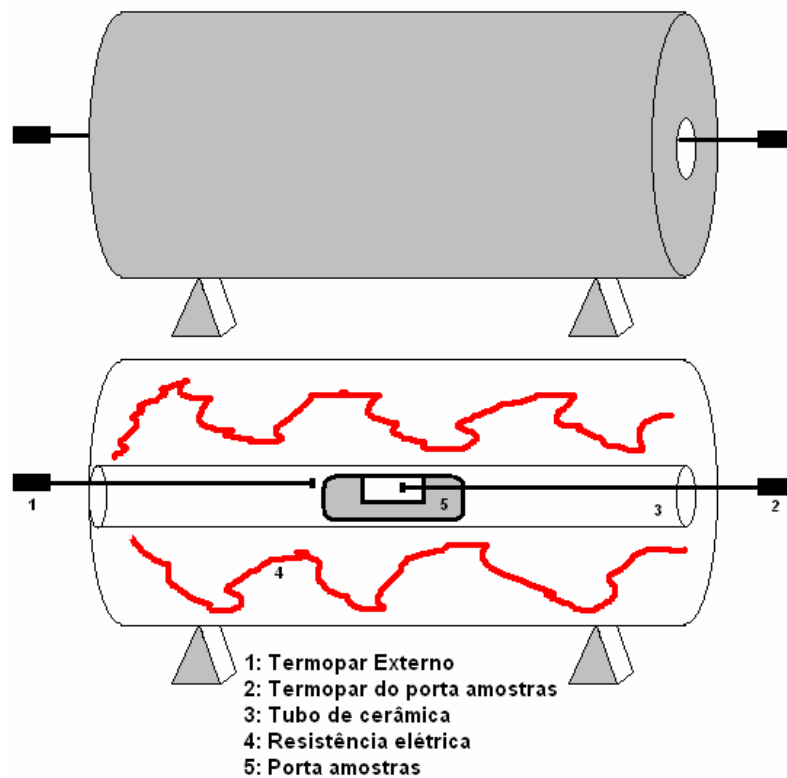


Figura 2 – Forno

Na Tabela 1, estão mostrados as condições de tempo e temperatura dos tratamentos térmicos feitos neste experimento.

Depois dos tratamentos térmicos, as amostras foram submetidas a um mesmo ataque químico em HF (40%) (ácido fluorídrico), a 15°C por 3,5 horas. Após a retirada das amostras do ácido, estas foram imersas em uma solução de NaHCO₃ (bicarbonato de sódio) a fim de frear o efeito do ácido.

Então as amostras foram levadas para análise em um microscópio óptico Zeiss Axioplan com aumento nominal de 1250x. Neste estágio foram medidos os comprimentos projetados de 50 traços em cada amostra. Foram medidos somente os traços dos íons que incidiram 30° com a normal.

Resultados e discussão

Os resultados obtidos a partir da análise microscópica estão mostrados na tabela abaixo.

Tabela 1 – Resultados das medidas dos traços.

Amostra	Annealing		Comprimento Projetado		Comprimento	
	Duração do aquecimento (h)	Temp. (°C)	P (μm)	Desvio Padrão (μm)	L (μm)	L / L ₀ **
R*	-	-	10,25 ± 0,05	0,38	20,50 ± 0,10	1,00 ± 0,01
D1	2	358 ± 1	9,81 ± 0,05	0,36	19,62 ± 0,10	0,96 ± 0,01
D2	2	447 ± 1	8,92 ± 0,04	0,28	17,85 ± 0,08	0,87 ± 0,01
D3	2	547 ± 1	0,96 ± 0,03	0,21	1,91 ± 0,06	0,09 ± 0,03
D4	10	349 ± 1	9,48 ± 0,06	0,4	18,95 ± 0,11	0,92 ± 0,01
D5	10	447 ± 1	8,57 ± 0,04	0,29	17,14 ± 0,08	0,84 ± 0,01
D6	10	547 ± 1	0,50 ± 0,02	0,16	1,00 ± 0,04	0,05 ± 0,04

* Amostra de referência que não foi submetida ao annealing.

** L₀ é o comprimento dos traços na amostra de referência.

Os resultados de L / L₀ estão mostrados na Figura 3.

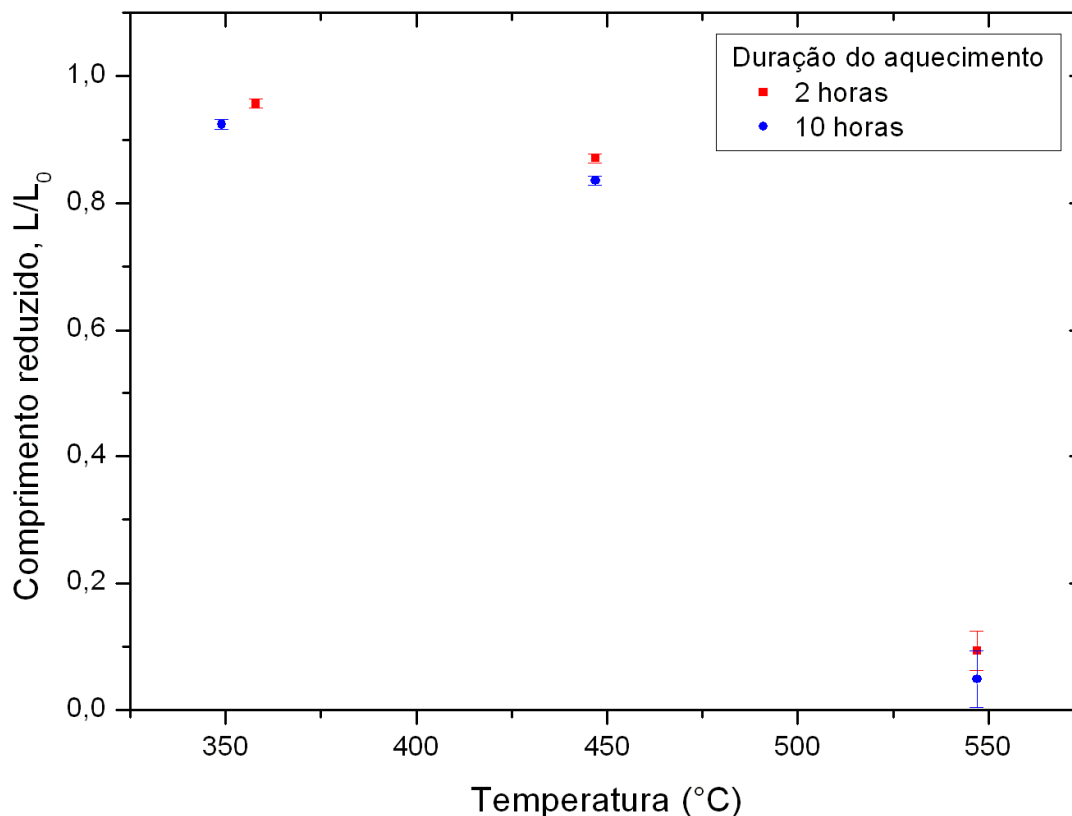


Figura 3 – Gráfico do comprimento reduzido em função da temperatura.

A partir da análise do gráfico, é possível verificar que o annealing se comporta de diferentes maneiras dentro das faixas de temperatura estipuladas. De 350 °C à 450 °C ocorre um annealing mais suave, mas a partir de 450 °C ocorre um annealing mais acelerado chegando em 550 °C com os traços bem reduzidos, quase total.

Nota-se também que os traços de incidência de íons a 45°, de comprimento $L = 9,1\mu\text{m}$, foram todos apagados para essa última faixa de temperatura, ou seja, ocorreu total reconstituição da rede cristalina do material.

A Figura 4 e a Figura 5 mostram os comprimentos medidos nas amostras D1 e D3, aquecidas a 358 °C e 547 °C respectivamente.

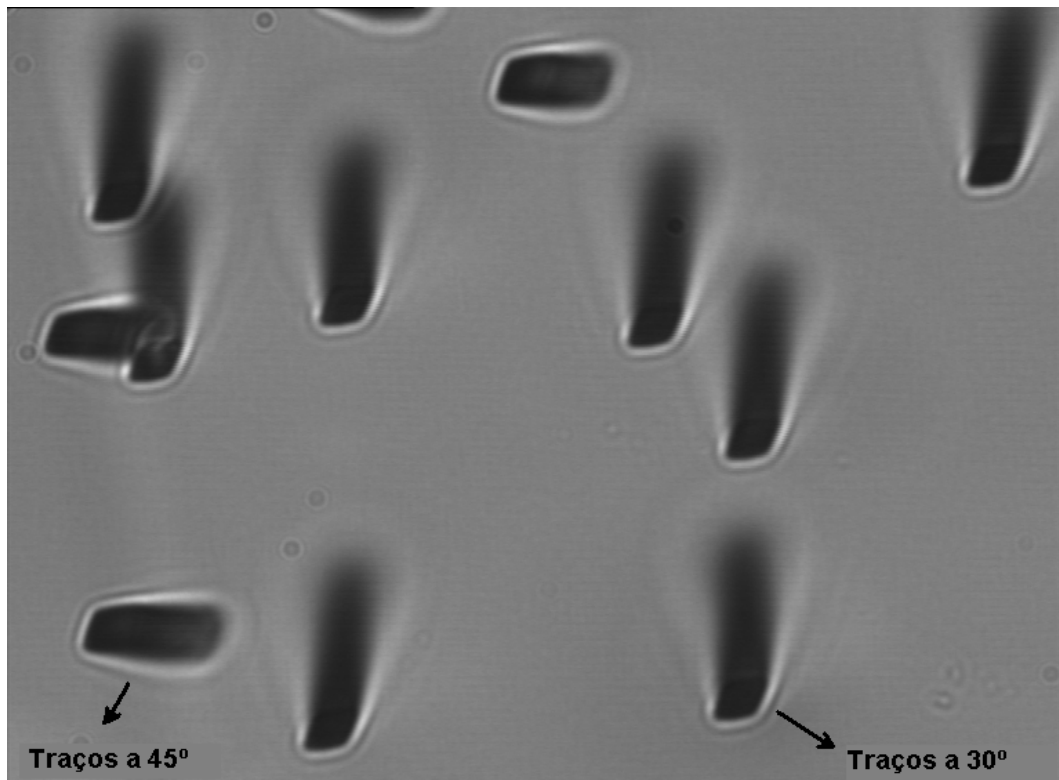


Figura 4 – Annealing no aquecimento de 358 °C.

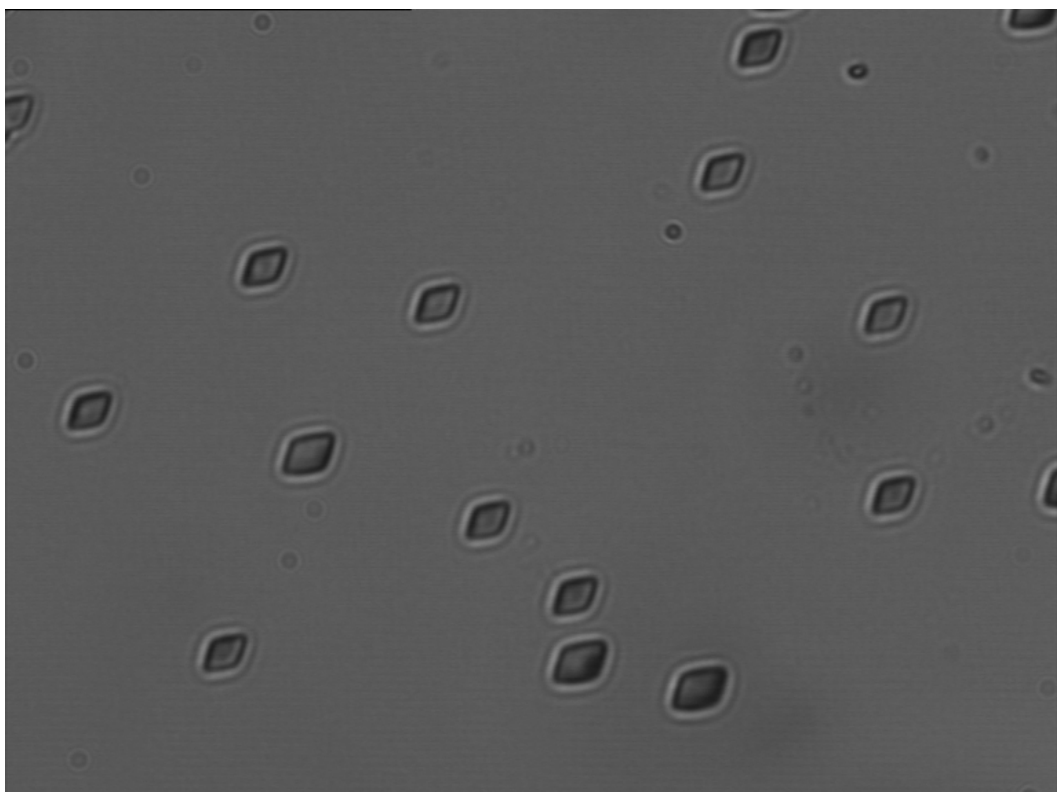


Figura 5 – Annealing no aquecimento de 547 °C.

Observa-se também que o comportamento do annealing para temperaturas anteriores a 350° C não é conhecido, e dessa maneira não é possível estabelecer com precisão uma curva específica comprimento reduzido em função da temperatura de aquecimento. Para sanar esse problema, novas temperaturas devem ser testadas para os tempos já utilizados.

É possível verificar também que os tempos utilizados neste experimento fornecem dados que ficam próximos uns dos outros e dessa maneira, novos períodos, como por exemplo um aquecimento de 100 horas, devem ser feitos com a finalidade de completar o gráfico acima com as informações faltantes para conclusões mais precisas.

Também foi observado que a espessura dos traços acabou ficando acima do desejado, atrapalhando a precisão das medidas menores. Em um próximo experimento, um estudo detalhado das condições de ataque químico será efetuado de modo a encontrar uma melhor condição para a obtenção de traços mais finos.

Conclusões

Neste experimento foi possível observar que ocorre o annealing na faixas de temperatura e tempo neste utilizadas. Com os resultados obtidos e com a análise do gráfico construído, nota-se que é preciso apenas verificar com maior precisão os valores que realmente marcam o início da taxas de annealing e os valores finais para os quais os traços todos se apagam (annealing total).

Para tanto, um novo planejamento precisa ser feito, de modo a gerar uma nova tabela com valores suficientemente menores e maiores dos que já foram utilizados, tanto em tempo, quanto em temperatura de aquecimento das amostras.

Contudo, conclui-se que o todo o experimento serviu para delimitar os espaços de estudo do annealing da muscovita e dessa maneira fornecer os dados necessários para um estudo mais detalhado e aprofundado sobre o mesmo.

Comentários do orientador

O aluno desenvolveu um trabalho experimental bastante completo para o curto período de tempo disponível. O objetivo era delimitar o espaço experimental onde a reconstituição da rede cristalina da muscovita ocorre de maneira observável, devido ao efeito combinado de tempo e temperatura, depois de ser danificada por íons de ^{78}Kr . Todos os experimentos previstos foram realizados e os objetivos iniciais foram atingidos. Os resultados obtidos serão usados para planejar experimentos futuros. Considero muito bom o desempenho do aluno.

Data de conclusão: 10 de junho de 2009.

Referências

Belyaev, A.D., Bikbova, Z.S., Kogan, V.I., Muminov, A.I. and Usmandiyarov, A.M., 1982. Fission fragment trace annealing in mica-muscovite. *Fizika Tverdogo Tela*, 24(2): 623-625.

Boztug, D., Jonckheere, R., Wagner, G.A., Ercin, A.I. and Yegingil, Z., 2007. Titanite and zircon fission-track dating resolves successive igneous episodes in the formation of the composite Kackar batholith in the Turkish eastern Pontides. *International Journal of Earth Sciences*, 96: 875-886.

Curvo, E.A.C. et al., 2005. On epidote fission track dating. *Radiation Measurements*, 39(6): 641-645.

Curvo, E.A.C., Iunes, P.J., Guedes, S., Palissari, R. and Hadler, J.C., 2007. Comparison of population and external detector method dating in epidote. *Radiation Measurements*, 42: 1307-1314.

Dartyge, E., 1978. Annealing of latent tracks of heavy-ions in mica muscovite. *Journal De Physique*, 39(12): 1287-1297.

Donelick, R.A., O'Sullivan, P.B. and Ketcham, R.A., 2005. Apatite fission-track analysis, *Low-Temperature Thermochronology: Techniques, Interpretations, and Applications. Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, pp. 49-94.

Galliker, D., Hugentob.E and Hahn, B., 1970. Spontaneous nuclear fission of U-238 and Am-241. *Helvetica Physica Acta*, 43(6-7): 593-&.

Garzonru, L. and Fernande, M.P., 1974. Absolute determination of muscovite mica ages from Torre (Villalba) using fission-track dating method. *Anales De Fisica*, 70(2): 158-162.

Guedes, S. et al., 2005. Kinetic model for the annealing of fission tracks in zircon. *Radiation Measurements*, 40: 517-521.

Guedes, S., Hadler, J.C., Iunes, P.J., Paulo, S.R. and Zuniga, A., 2000. The spontaneous fission decay constant of U-238 using SSNTD. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 245(2): 441-442.

Guedes, S. et al., 2003a. The use of the U(n,f) reaction dosimetry in the determination of the $\lambda(f)$ value through fission-track techniques. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section a-Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment*, 496(1): 215-221.

Guedes, S. et al., 2006. Kinetic model for the annealing of fission tracks in minerals and its application to apatite. *Radiation Measurements*, 41(4): 392-398.

Guedes, S. et al., 2003b. Spontaneous-fission decay constant of U-238 measured by nuclear track techniques without neutron irradiation. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 258(1): 117-122.

Hadler, J.C. et al., 1981. Measurement of the spontaneous-fission disintegration constant of U-238. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 5(1-2): 45-52.

Jonckheere, R., Enkelmann, E., Min, M., Trautmann, C. and Ratschbacher, L., 2007. Confined fission tracks in ion-irradiated and step-etched prismatic sections of Durango apatite. *Chemical Geology*, 242(1-2): 202-217.

Ketcham, R.A., Donelick, R.A. and Carlson, W.D., 1999. Variability of apatite fission-track annealing kinetics: III. Extrapolation to geological time scales. *American Mineralogist*, 84(9): 1235-1255.

Khan, H.A., Khan, N.A., Jamil, K. and Brandt, R., 1984. Annealing of heavy-ion latent damage trails in muscovite mica and CR-39 plastic track detectors. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 8(1-4): 377-380.

Lal, N. and Nagpaul, K.K., 1975. Annealing studies of fission damages in muscovite. *Indian Journal of Physics and Proceedings of the Indian Association for the Cultivation of Science*, 49(9): 637-641.

Laslett, G.M. and Galbraith, R.F., 1996. Statistical modelling of thermal annealing of fission tracks in apatite. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 60(24): 5117-5131.

Laslett, G.M., Green, P.F., Duddy, I.R. and Gleadow, A.J.W., 1987. Thermal annealing of fission tracks in apatite. 2. Quantitative analysis. *Chemical Geology*, 65(1): 1-13.

Metha, P.P. and Rama, 1969. Annealing effects in muscovite and their influence on dating by fission track method. *Earth and Planetary Science Letters*, 7(1): 82-&.

Metha, P.P. and Rama, 1976. Fission-track dating of muscovite and tektite. *Geochimica(2)*: 148-156.

Min, M., Enkelmann, E., Jonckheere, R., Trautmann, C. and Ratschbacher, L., 2007. Measurements of fossil confined fission tracks in ion-irradiated apatite samples with low track densities. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms*, 259(2): 943-950.

Moreira, P., Guedes, S., Iunes, P.J. and Hadler, J.C., 2005. D-optimal design of fission-track annealing experiments. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section B-Beam Interactions with Materials and Atoms*, 240(4): 881-887.

Reiners, P.W., Ehlers, T.A. and Zeitler, P.K., 2005. Past, present, and future of thermochronology, *Low-Temperature Thermochronology: Techniques, Interpretations, and Applications*. *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, pp. 1-18.

Sandhu, A.S., Ramola, R.C., Singh, S. and Virk, H.S., 1989. Annealing of heavy-ion radiation-damage in muscovite mica and concept of single activation energy. *Radiation Effects and Defects in Solids*, 107(2-4): 75-78.

Sandhu, A.S., Singh, S. and Virk, H.S., 1988. Track annealing studies in muscovite mica. *Nuclear Tracks and Radiation Measurements*, 15(1-4): 241-244.

Singh, L., Sandhu, A.S., Singh, S. and Virk, H.S., 1989. Thermal annealing of heavy-ion tracks in muscovite mica. *Radiation Effects and Defects in Solids*, 108(2-4): 257-266.

Tagami, T. and O'Sullivan, P.B., 2005. Fundamentals of fission-track thermochronology, *Low-Temperature Thermochronology: Techniques, Interpretations, and Applications*. *Reviews in Mineralogy & Geochemistry*, pp. 19-47.

Tung, Y.S. et al., 1997. Gold ion irradiated muscovite mica: Infrared and optical properties

of defects and metal nanocrystals, Proceedings of the 13th International Conference on Defects in Insulating Materials - Icdim 96. Materials Science Forum, pp. 691-694.

Wagner, G.A. and Van-den-haute, P., 1992. Fission Track Dating. Solid Earth Science Library, 6, 285 pp.

Yoshioka, T., Tsuruta, T., Iwano, H. and Danhara, T., 2005. Spontaneous fission decay constant of U-238 determined by SSNTD method using CR-39 and DAP plates. Nuclear Instruments & Methods in Physics Research Section a-Accelerators Spectrometers Detectors and Associated Equipment, 555(1-2): 386-395.