

Estudo da viabilidade de identificação de razões isotópicas utilizando coincidências gama-partícula

Paula R.P. Allegro^a, Márcia A. Rizzutto^a, Vitor A. P. de Aguiar^a, Vinicius A. B. Zagatto^a, Nilberto H. Medina^a, José Roberto B. de Oliveira^a, Nemitala Added^a, Roberto V. Ribas^a

^a Departamento de Física Nuclear – Instituto de Física da USP.

Resumo

Este projeto tem como objetivo estudar a viabilidade de determinar razões isotópicas de elementos estáveis em materiais utilizando a técnica *Photon-tagged nuclear reaction analysis*. Para tanto, serão realizadas duas experiências para determinação da razão isotópica de um alvo de Cu natural utilizando o acelerador Pelletron (canalizações 30A e 30B). A experiência na canalização 30A, cujo arranjo experimental está pronto, será para confirmar a seção de choque experimental de excitação dos isótopos ^{63,65}Cu, enquanto que a experiência na canalização 30B será utilizada para determinar a viabilidade da técnica com medidas em ar. Serão necessários **10 (5+5) dias** de máquina para realização do projeto.

Introdução e Justificativa

Medidas de razão isotópica são de fundamental importância para datação arqueológica e geológica [1], proveniência de materiais [2-5], tecnologia nuclear [6], estudos ambientais [7] e aplicações biomédicas [8]. Diversas técnicas são utilizadas para a medida de razão isotópica, tais como Espectrometria de massa com acelerador (AMS) [9], espectrômetro de massa com plasma indutivamente acoplado (ICP-MS) [10] e Espectrometria de massa de ionização térmica [11], sendo necessário a preparação de amostras para a utilização dessas técnicas.

Estudos realizados pelo Grupo de Física Aplicada com Aceleradores (GFAA) em colaboração com o Museu de Arqueologia e Etnologia da Universidade de São Paulo (MAE-USP) indicam a necessidade de se implantar uma técnica de medida de razões isotópicas sem digestão (preparação) das amostras, ou idealmente na próprio objeto, para a identificação de proveniência de cerâmicas arqueológicas através das medidas de razões isotópicas de $\delta^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ e $\delta^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$. Já os estudos realizados com o Instituto de Geociências indicam a necessidade de se medir a razão isotópica entre os oxigênios estáveis $\delta^{17}\text{O}/^{16}\text{O}$ e $\delta^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ para determinação da proveniência terrestre ou extraterrestre de minerais, além de medidas de razões isotópicas de boro ($\delta^{10}\text{B}/^{11}\text{B}$) e cobre ($\delta^{65}\text{Cu}/^{63}\text{Cu}$) para medida de gemas como turquesas e turmalinas, ou isótopos estáveis do chumbo ($\delta^{204}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ e $\delta^{207}\text{Pb}/^{208}\text{Pb}$) para determinação de proveniência de fósseis.

Na década de 90 surgiu a ideia de determinar a razão isotópica através de medidas de reações nucleares com coincidências gama-partícula, técnica conhecida como *Photon-tagged nuclear reaction analysis* (pNRA) [12,13]. A vantagem dessa técnica em relação às outras é que não é preciso digerir ou tirar uma amostra do material a ser analisado, sendo uma técnica ideal para aplicação em material arqueológico, fósseis, objetos de Bens Culturais, e gemas preciosas.

Poucos estudos foram realizados utilizando a técnica pNRA para determinação de razões isotópicas [2,14] em materiais. A principal razão é a falta de reações ressonantes em baixa energia (até 3 MeV) que excitam simultaneamente os isótopos leves como $^{10,11}\text{B}$, $^{12,13}\text{C}$, $^{14,15}\text{N}$, $^{16,17,18}\text{O}$ com seções de choque acima de 100 mb, uma vez que a maioria dos laboratórios que analisam materiais possuem aceleradores de 3 a 5 MV [14-16]. Além disso, a baixa energia desses aceleradores impede a análise de materiais pesados, tais como Pb e Sr, uma vez que o feixe incidente de próton, dêuteron ou partícula alfa não possui energia para superar a barreira Coulombiana.

Este projeto tem como objetivo estudar a viabilidade de aplicação da técnica pNRA para estudo de razões isotópicas de elementos leves e pesados utilizando feixes de prótons de mais alta energia (10-14 MeV) sem a necessidade de se retirar ou preparar amostras do material. Este estudo faz parte do projeto de pós-doutorado da proponente, Paula R. P. Allegro, com bolsa FAPESP (processo nº 2013/19976-8).

Materiais e Métodos

A implementação da técnica pNRA será realizada no acelerador Pelletron 8UD pertencente ao Departamento de Física Nuclear do Instituto de Física da USP. A escolha de se utilizar esse acelerador vem do fato de ser possível obter feixes de íons com mais alta energia, podendo-se realizar reações que excitam elementos pesados como, por exemplo, chumbo. Dentre as canalizações existentes no laboratório, a canalização 30A possui um aparato experimental pronto para medidas de coincidências gama-partícula em vácuo, o SACI-PERERE, [17] (ver figura 1a), enquanto que a canalização 30B já possui aparato experimental para a extração de feixe externo [18] (ver figura 1b).

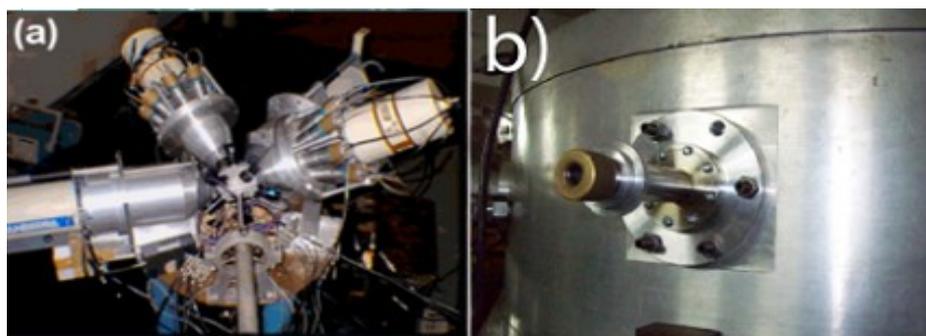


Figura 1: a) sistema de medidas de coincidência gama-partícula existente na canalização 30A. b) detalhe da saída do feixe externo da canalização 30B. Imagens adaptadas das ref. [19] e [18], respectivamente.

A técnica pNRA utiliza reações nucleares que emitam uma partícula carregada, $A(p,p'\gamma)A^*$, onde A é o núcleo de interesse a ser estudado. Essa coincidência é necessária para garantir que o isótopo medido venha da amostra e não do fundo existente no laboratório ou mesmo do fato do feixe de íons sofrer algum desvio e excitar algum elemento da canalização. A dificuldade de se utilizar a técnica pNRA para medida da razão isotópica vem da necessidade de

se conhecer muito bem as seções de choque das reações envolvidas para a excitação dos isótopos de interesse para determinar a razão isotópica corretamente.

Para a implementação da técnica pNRA, serão realizadas duas experiências testes com alvos de Cu natural (abundâncias de 69,15 (15)% e 30,85 (15)% para os isótopos $^{63,65}\text{Cu}$, respectivamente) e alvos de ^{63}Cu e ^{65}Cu com 99,9% de pureza cada.

A primeira experiência usará o sistema de coincidência gama-partícula em vácuo disponível na canalização 30A para verificação com os cálculos teóricos das seções de choque das reações $^{63}\text{Cu}(p,p'\gamma)^{63}\text{Cu}$ (360 mb [20]) e $^{65}\text{Cu}(p,p'\gamma)^{65}\text{Cu}$ (185 mb [20]) com uma energia de feixe igual a 12 MeV e utilizando os alvos de ^{63}Cu e ^{65}Cu com 99,9% de pureza cada. Bem como a determinação da razão isotópica através da medida do alvo de Cu natural. Neste experimento será utilizado a eletrônica padrão de coincidência gama-partícula já disponível na canalização.

A segunda experiência será para implementação da técnica em ar, utilizando um detector de GeHP com eficiência de 60% para detecção de raios gama e dois detectores barreira de superfície para detecção de partículas carregadas. Nesta experiência também será implementado uma nova eletrônica de aquisição, nesse caso, será feita utilizando o módulo FPGA da CAEN, modelo 6724, para aquisição do sinal dos pré-amplificadores do detector de GeHP e barreira de superfície.

Solicitação de Dias de Máquina

Para teste da implementação da técnica pNRA para medida de razões isotópicas, solicita-se:

- **5 dias** para verificação da seção de choque das reações $^{63}\text{Cu}(p,p'\gamma)^{63}\text{Cu}$ e $^{65}\text{Cu}(p,p'\gamma)^{65}\text{Cu}$ com uma energia de feixe igual a 12 MeV utilizando os alvos de Cu de 99,9% de pureza e o de Cu natural para a medida de razão isotópica na canalização 30A. Para as medidas dos primeiros estados excitados dos núcleos $^{63,65}\text{Cu}$, estima-se uma taxa de detecção de coincidências gama-partícula da ordem de 600 contagens/hora para o núcleo ^{63}Cu e de 250 contagens/hora para o núcleo ^{65}Cu com uma corrente de 1 nA e alvo de 1 mg/cm² (provável corrente utilizada para análise de objetos do patrimônio) utilizando o arranjo experimental SACI-PERERE. A justificativa de 5 dias se dá pela necessidade de ter uma boa estatística (~10000 contagens) em cada pico de interesse para se obter incertezas da ordem de 1%.
- **5 dias** para verificação do sistema para medida de razão isotópica em ar utilizando as reações $^{63}\text{Cu}(p,p'\gamma)^{63}\text{Cu}$ e $^{65}\text{Cu}(p,p'\gamma)^{65}\text{Cu}$ com uma energia de feixe igual a 12 MeV e um alvo natural de Cu. Para as medidas dos primeiros estados excitados dos núcleos $^{63,65}\text{Cu}$ no arranjo experimental em ar, estima-se uma taxa de detecção de coincidências gama-partícula da ordem de 180 contagens/hora para o núcleo ^{63}Cu e de 70 contagens/hora para o núcleo ^{65}Cu com uma corrente de 1 nA e alvo de 1 mg/cm². A justificativa de 5 dias se dá pela necessidade de ter uma boa estatística (~10000 contagens) em cada pico de interesse para se obter incertezas da ordem de 1%.

Total de dias solicitados: 10 dias (5+ 5).

Referências

- [1] R.E. Taylor, **Anal. Chem.**, v. 59 p. 317A, 1987.
- [2] M. Borysiuk et al., **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B**, v. 348, p. 269, 2015.
- [3] B-P. Li et al., **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B** v. 240, p. 726, 2005.
- [4] A. G. Nord et al., **J Cult Herit.**, v. 16, p. 856, 2015.
- [5] I. Kuleff et al., **J Cult Herit.**, v. 7, p. 244, 2006.
- [6] S. Thangavel et al., **Spectrochim. Acta Part B**, v. 61 p. 314, 2006.
- [7] J. Qiao et al., **Anal. Chem.**, v. 81, p. 8185, 2009.
- [8] M. Costas-Rodríguez et al., **Trends Anal. Chem.**, v. 76, p. 182, 2016.
- [9] K. Dong et al., **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B**, v. 361, p. 471, 2015.
- [10] M.E. Sánchez-Lorda et al., **Int. J. Mass Spectrom.**, v. 333, p. 34, 2013.
- [11] D. Suzuki et al., **Appl. Radiat. Isot.**, v. 96, p. 52, 2015.
- [12] P. Kristiansson, E. Swietlicki, **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B**, v. 49, p. 98, 1990.
- [13] P. Kristiansson, B. G. Martinsson, **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B** v.132, p. 159, 1999.
- [14] M. Borysiuk et al., **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B**, v. 332, p. 202, 2014.
- [15] <<http://www2.if.usp.br/~lamfi/>>. Acesso em: abril 2016.
- [16] F. Lucarelli et al., **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A**, v. 318, p. 55, 2014.
- [17] J.A. Alcántara-Núñez et al., **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A**, v. 497, p. 429, 2003.
- [18] V. A. P. Aguiar, "*Efeitos de radiação em dispositivos eletrônicos com feixes de íons pesados*", Dissertação de Mestrado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, São Paulo, 2014.
- [19] P. R. P. Allegro, "*Sistemática de núcleos ímpar-ímpar de Ga na região de massa A = 60 – 70*", Tese de Doutorado, Instituto de Física da Universidade de São Paulo, São Paulo, 2013.
- [20] O.B. Tarasov, D. Bazin, **Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B**, v. 204, p. 174, 2003.

LABORATÓRIO ABERTO DE FÍSICA NUCLEAR

PAC 2016

| | |
|--|------------------------------|
| Proposal | N° |
| Title: Estudo da viabilidade de identificação de razões isotópicas utilizando coincidências gama-partícula | |
| Responsable: Paula Rangel Pestana Allegro | e-mail: allegro@if.usp.br |
| Participants: Paula R. P. Allegro (IFUSP), Márcia A. Rizzutto (IFUSP), Vitor A. P. de Aguiar (IFUSP), Vinicius A. B. Zagatto (IFUSP), Nilberto H. Medina (IFUSP), José Roberto B. de Oliveira (IFUSP), Nemitala Added (IFUSP), Roberto V. Ribas (IFUSP). | |
| Spokeperson: Paula Rangel Pestana Allegro | e-mail: allegro@if.usp.br |
| Telephone: (11) 994161893 ou 3091-6657 | Skype: paula.r.p.allegro |
| Number of days for experiment: | 10 (5+5) dias |
| Period planned for the experiment (are the setup ready for beam time?): O projeto consiste em duas fases: a primeira fase utilizará o arranjo experimental SACI-PERERE, já disponível e pronta para ser utilizada na canalização 30A e pretende-se realizar experiência em junho 2016. A segunda fase envolve construção de suportes para utilização de um detector GeHP e dois detectores barreira de superfície na canalização 30B para medidas em ar, que deverá estar pronto em setembro de 2016, período que deverá ser realizada a segunda experiência. | |

Technical information

| Ion source | | | Accelerator | | | Experimental Area | |
|------------|----------------------|---------------------|------------------|------------------|---------------|-------------------|------------------|
| Beam | Cathode | $I_{\text{mínima}}$ | V_{min} | V_{max} | Bunched beam? | Beam line | Target |
| 1H | TiH ₂ +Al | 10 nA | 5 MV | 7 MV | Não | 30A | Cu (natural) |
| 1H | TiH ₂ +Al | 10 nA | 5 MV | 7 MV | Não | 30A | ⁶³ Cu |
| 1H | TiH ₂ +Al | 10 nA | 5 MV | 7 MV | Não | 30A | ⁶⁵ Cu |
| 1H | TiH ₂ +Al | 10 nA | 5 MV | 7 MV | Não | 30B | Cu (natural) |
| | | | | | | | |

Other relevant/needed information: Medidas a serem realizadas durante o projeto de pós-doutorado de Paula R. P. Allegro