

# IMPLANTAÇÃO DA METODOLOGIA DE ESPECTROMETRIA 'ALFA' PARA A DETERMINAÇÃO DE ISÓTOPOS DE U E Th EM ROCHAS ÍGNEAS: APLICAÇÃO AO ESTUDO DO DESEQUILÍBRIO RADIOATIVO NA ILHA DA TRINDADE

**Rosana Nunes dos Santos**

Orientadora: Dra. Leila Soares Marques (IAG-USP)

129 p. – Tese (Doutorado)

Defesa: 11/5/2001

## RESUMO

Este trabalho descreve detalhadamente a implantação de rotinas experimentais para a determinação das atividades  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  e  $^{230}\text{Th}$ , pela técnica de espectrometria alfa. As melhores condições foram obtidas utilizando-se traçadores de  $^{233}\text{U}$  e  $^{232}\text{U}$  e  $^{229}\text{Th}$ , simulando algumas situações comumente encontradas no processamento de silicatos. A qualidade das determinações foi avaliada efetuando-se testes com os padrões geológicos brasileiros BB-1 (basalto) e GB-1 (granito). O processamento radioquímico consta das seguintes etapas: adição de traçadores radioativos e dissolução das amostras através de digestão ácida, pré-concentração de U e Th por co-precipitação, separação e purificação desses elementos por cromatografia de troca iônica e eletrodeposição em discos de aço inoxidável. Os rendimentos químicos para a determinação de urânio e tório, para ambos os padrões, são da ordem de 60% e 70%, respectivamente. Esta metodologia fornece resultados com elevados níveis de precisão (precisão relativa inferior a 4%) e de exatidão (da ordem de 1%, que são fundamentais para aplicações em estudos petrogenéticos. A espectrometria alfa, juntamente com os métodos de análise por ativação neutrônica e espectrometria gama natural, foram aplicados ao estudo do desequilíbrio radioativo nas rochas vulcânicas da Ilha da Trindade e em um fonólito de Martin Vaz. Com isso, foram determinadas as razões de atividades ( $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ), ( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ) e ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ), como também as atividades dos núclídeos  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  e  $^{208}\text{Tl}$ . As análises químicas de elementos maiores e menores, obtidas por meio da técnica de fluorescência de raios X, auxiliaram na interpretação desses resultados. No estudo da série do  $^{232}\text{Th}$ , verificou-se que a condição de equilíbrio radioativo foi atingida, indicando que o sistema permaneceu fechado para todos os seus membros nos últimos 40 anos. As rochas mais antigas da ilha (Complexo Trindade e Sequência Desejado) encontram-se em equilíbrio radioativo secular na série do  $^{238}\text{U}$ , conforme esperado. Por outro lado, os resultados da análise das rochas pertencentes aos três últimos episódios vulcânicos (Formação Morro Vermelho, Formação Valado e Vulcão do Paredão) ocorridos em Trindade, mostram que a série do  $^{238}\text{U}$  encontra-se em desequilíbrio radioativo entre  $^{230}\text{Th}$  e  $^{238}\text{U}$ . Além disso, as únicas três amostras da Formação Morro Vermelho analisadas por espectrometria gama mostraram desequilíbrio entre  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{238}\text{U}$ . As determinações das razões de atividades ( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ) e ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ) permitiram estimar a idade da Formação Morro Vermelho em cerca de 140.000 anos. No caso de Martin Vaz, uma única amostra disponível (fonólito peralcalino) mostrou um forte desequilíbrio entre  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{238}\text{U}$ , o qual foi interpretado como resultante de uma perda substancial de Ra, ocorrida no intervalo de 8.000 e 40 anos atrás.

## ABSTRACT

This work describes the implementation of experimental procedures for alpha spectrometry measurement of  $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$  and  $^{230}\text{Th}$  activities in silicates. The best experimental conditions were defined using  $^{233}\text{U}$ ,  $^{232}\text{U}$  and  $^{229}\text{Th}$  radioactive tracers and simulating the usual conditions found in processing silicate samples. The chemical procedure consists of the following steps: radioactive tracer addition and adapted dissolution by acid digestion, U and Th pre-concentration by co-precipitation, element separation and purification by ion exchange chromatography and electrodeposition in stainless steel disks in order to evaluate its effectiveness. This procedure was applied to the Brazilian geological standards BB-1 (basalt) and GB-

1 (granite). The chemical yields obtained for uranium and thorium are of about 60% and 70%, respectively, for both matrices. The described methodology provides activity measurements with less than 4% relative precisions and accuracies of about 1%, that are essential for petrogenetic applications. The  $^{238}\text{U}$  and  $^{232}\text{Th}$  series disequilibrium conditions were investigated by alpha spectrometry, together with neutron activation analysis and natural gamma-ray spectrometry.  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$  and  $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$  activity ratios were obtained, as well as, the  $^{234}\text{Th}$ ,  $^{214}\text{Pb}$ ,  $^{214}\text{Bi}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  and  $^{208}\text{Tl}$  specific activities. These results were interpreted along with additional constraints given by major and minor element concentrations, determined by X-ray fluorescence. The  $^{232}\text{Th}$  series is in secular radioactive equilibrium in all analysed samples. In the case of the  $^{238}\text{U}$  series, the equilibrium condition was verified, as expected, in the oldest rocks from the Trindade Island (Trindade Complex and Desejado Sequence). On the other hand, the results show that, in the samples from the last three volcanic episodes of the island (Morro Vermelho Formation, Valado Formation and Vulcão do Paredão), the  $^{230}\text{Th}$  and  $^{238}\text{U}$  are not in secular equilibrium. Furthermore, three Morro Vermelho Formation samples analysed by gamma spectrometry showed disequilibrium between  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{230}\text{Th}$ . The obtained ( $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ ) and ( $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ ) activity ratios allowed to estimate a 140,000 y age for the Morro Vermelho Formation. In the case of the Martin Vaz sample (peralkaline phonolite) a strong disequilibrium between  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{238}\text{U}$  was observed, suggesting a substantial loss of  $^{226}\text{Ra}$  between 8,000 y and 40 y ago.