

GIULIO BIGAZZI \*, ELIANA MARIA CIOCCHETTI \*\*, JULIUS CESAR HADLER \*\*,  
CESARE MANSUETO GIULIO LATTES \*\*, DINAH AUGUSTA BARRETO SERRA \*\*

## OSSERVAZIONI SULL'ANISOTROPIA NELLA REGISTRAZIONE DI FISSIONI DI URANIO IN MUSCOVITE

RIASSUNTO. — La distribuzione angolare delle tracce di fissione rivelate nella muscovite non è uniforme. È stata osservata anisotropia nella registrazione sia dei frammenti della fissione spontanea dell' $^{238}\text{U}$  che di quelli della fissione indotta dell' $^{235}\text{U}$ . I massimi e i minimi della distribuzione azimutale sono legati a direzioni caratteristiche del cristallo. In questa distribuzione è presente una struttura fine che indica direzioni privilegiate selettive. Si fa una prima valutazione quantitativa dell'influenza dell'anisotropia sull'efficienza di registrazione della muscovite e sul calcolo dell'età del minerale.

ABSTRACT. — The angular distribution of fission tracks in muscovite has been found to be non-uniform. Anisotropy of recording has been observed both for the spontaneous fission fragments of  $^{238}\text{U}$  and for the induced fission fragments of  $^{235}\text{U}$ . Maxima and minima in the azimuthal distribution are related to characteristic crystal directions. In this distribution a fine structure is present which indicates a high selectivity of privileged directions. A first quantitative evaluation is given of the influence of anisotropy on the recording efficiency of muscovite and on the age calculations for the mineral.

Con le osservazioni di SILK e BARNES (1959) delle tracce dei frammenti di fissione nella mica e con la tecnica messa a punto da FLEISCHER, PRICE e WALKER (P. B. PRICE e R. M. WALKER, 1962; P. B. PRICE e R. M. WALKER, 1963; R. L. FLEISCHER et al., 1963) per la rivelazione chimica delle stesse è nato un metodo per la datazione dei minerali che è stato molto utilizzato in questi ultimi anni. Esso consiste nella misura della frazione di  $^{238}\text{U}$  che ha subito la fissione. Con un attacco chimico opportuno si possono rivelare le tracce della fissione spontanea. Irradiando in seguito il campione in osservazione con una dose nota di neutroni termici si induce la fissione dell' $^{235}\text{U}$ . Il numero delle tracce indotte è proporzionale, fissata la dose, al contenuto d'uranio del minerale. Con un nuovo attacco chimico si rivelano le tracce dovute alla fissione dell' $^{235}\text{U}$ .

\* Laboratorio di Geocronologia e Geochimica Isotopica del C.N.R., Pisa.

\*\* Dep. Cronologia, Raios Cosmicos e Altas Energias - Instituto de Fisica, Unicamp, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, S.P., Brasil.

L'età del minerale si calcola utilizzando la formula:

$$T = \frac{1}{\lambda} \ln \left( 1 + \frac{\lambda}{\lambda_F} \frac{\Phi \sigma}{\eta} \frac{\rho_F}{\rho_I} \right)$$

- $\lambda$  = costante di decadimento totale dell' $^{238}\text{U}$ ;  
 $\lambda_F$  = costante di decadimento per fissione dell' $^{238}\text{U}$ ;  
 $\phi$  = flusso integrato di neutroni termici (neut/cm<sup>2</sup>);  
 $\sigma$  = sezione d'urto per la fissione indotta dell' $^{235}\text{U}$ ;  
 $\eta$  = rapporto isotopico  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ ;  
 $\rho_F$  = tracce « fossili » rivelate per unità di superficie;  
 $\rho_I$  = tracce « indotte » rivelate per unità di superficie.

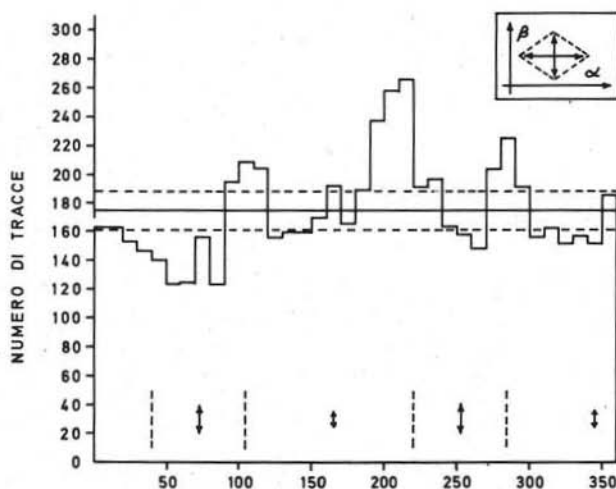


Fig. 1. — Distribuzione azimutale delle tracce ottenuta sommando i dati relativi a tre campioni di muscovite (0001-FT 22-0038). Sono state riportate, per ogni campione, tracce fossili e tracce indotte. Attacchi di 30' in HF 40 % a 40° C e di 120' in HF 50 % a 15° C. Numero totale di eventi 6300. Nel riquadro in alto è rappresentato schematicamente l'orientamento del parallelogramma (sezione della traccia col piano 001) rispetto alle indicatrici ottiche. In basso, le sbarrette verticali continue e tratteggiate corrispondono, rispettivamente, alla direzione delle diagonali e dei lati del parallelogramma. La retta orizzontale continua rappresenta il numero medio di tracce per intervallo, le due rette tratteggiate distano da essa di una deviazione standard.

Questa formula si basa principalmente sull'ipotesi che il rapporto tra numero di tracce rivelate per unità di superficie e numero di tracce per unità di volume sia uguale nel caso della fissione dell' $^{238}\text{U}$  e della fissione dell' $^{235}\text{U}$ . In questo lavoro abbiamo preso in considerazione la muscovite; molti campioni di questo minerale sono stati datati da vari ricercatori interessati specialmente alla cronologia delle rocce di età dell'ordine delle centinaia di milioni di anni. La muscovite, inoltre, è stata

spesso utilizzata come detector di ioni pesanti, principalmente nello studio della distribuzione degli atomi fissili nei solidi. Per quanto detto si capisce l'importanza di uno studio dettagliato dell'efficienza di registrazione della muscovite.

Generalmente si è supposto che la distribuzione delle tracce di fissione rivelate nella muscovite fosse isotropica nell'angolo solido, e cioè che l'efficienza di registrazione fosse indipendente dalla direzione della traccia. I nostri risultati sperimentali dimostrano che tanto per l'angolo azimutale come per l'angolo zenitale la distribuzione delle tracce non è uniforme.

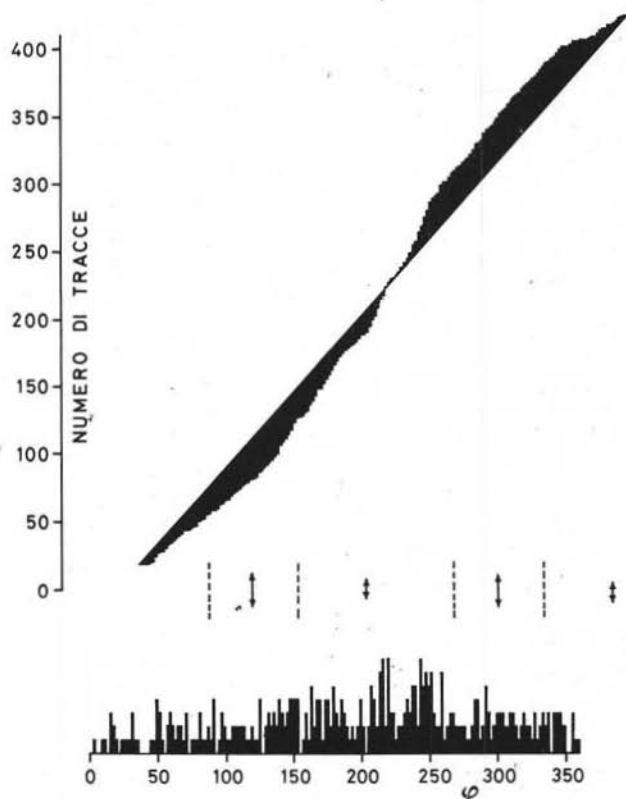


Fig. 2. — Istogramma e diagramma integrale della distribuzione azimutale delle tracce della muscovite 0001. Tracce fossili. Numero di eventi 404. Attacco di 5' in HF 40 % a 40° C.

Abbiamo misurato queste distribuzioni per varie condizioni di attacco, e cioè variando la concentrazione del reagente, la temperatura e la durata dell'attacco (HF 40 %, 40° C e HF 50 %, 15° C per vari tempi) e abbiamo sempre osservato anisotropia. Le misure sono state eseguite sia sulle tracce fossili che sulle indotte.

Nella Fig. 1 è rappresentato l'istogramma della distribuzione delle tracce in funzione dell'angolo azimutale ottenuto sommando i dati relativi a dieci differenti osservazioni corrispondenti a campioni di diversa provenienza in varie condizioni

di attacco. Per ogni campione abbiamo considerato la distribuzione delle tracce fossili e delle tracce indotte. Lo zero di ogni osservazione è stato fatto coincidere prendendo come riferimento una direzione caratteristica del cristallo. La figura di attacco nella muscovite ha una sezione orizzontale a forma di parallelogramma a causa dell'anisotropia della velocità di attacco dell'acido fluoridrico nel cristallo. Facendo coincidere per le dieci distribuzioni utilizzate nella Fig. 1 la diagonale

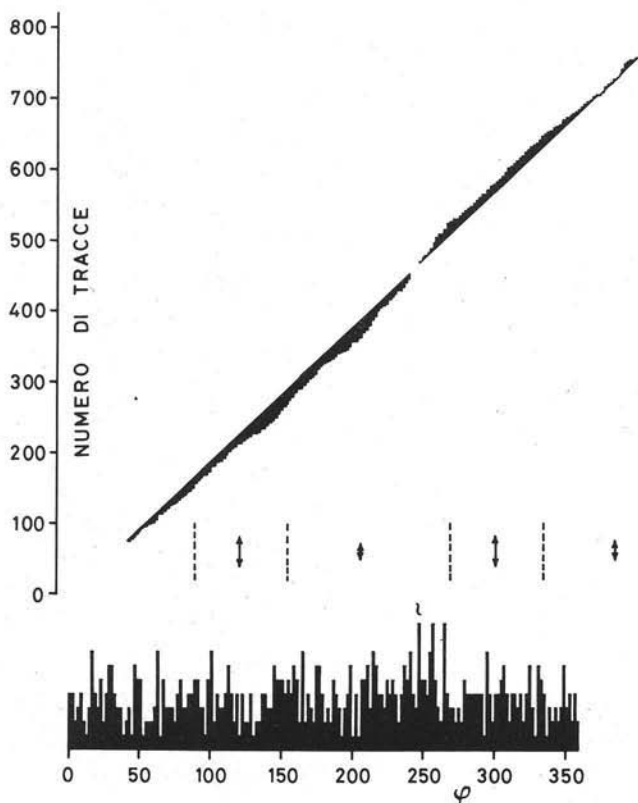


Fig. 3. — Istogramma e diagramma integrale della distribuzione azimutale delle tracce della muscovite 0001. Tracce fossili. Numero di eventi 681. Attacco di 30' in HF 40 % a 40° C.

del parallelogramma esse risultano orientate nello stesso modo. La somma è fortemente anisotropa: calcolando la probabilità che essa sia isotropa con il test del  $\chi^2$ , abbiamo trovato che si discosta da una distribuzione uniforme di 13 deviazioni standard.

L'esame della Fig. 1 indica che, scegliendo un'origine comune dell'angolo azimutale in relazione agli assi cristallini, le caratteristiche principali della distribuzione delle tracce sono le stesse. I massimi e i minimi appaiono nella stessa posizione rispetto all'orientamento del parallelogramma.

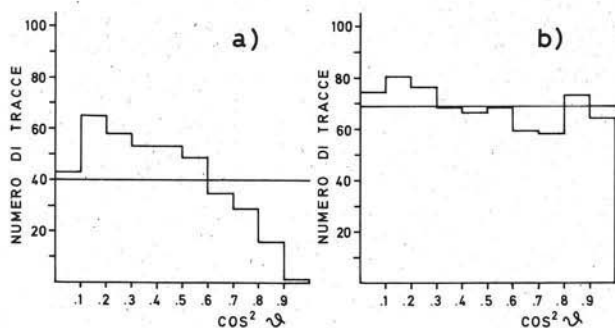


Fig. 4. — Distribuzione zenitale delle tracce del campione 0001. Tracce fossili. a) 404 eventi, attacco di 5' in HF 40% a 40° C; b) 681 eventi, attacco di 30' in HF 40% a 40° C.

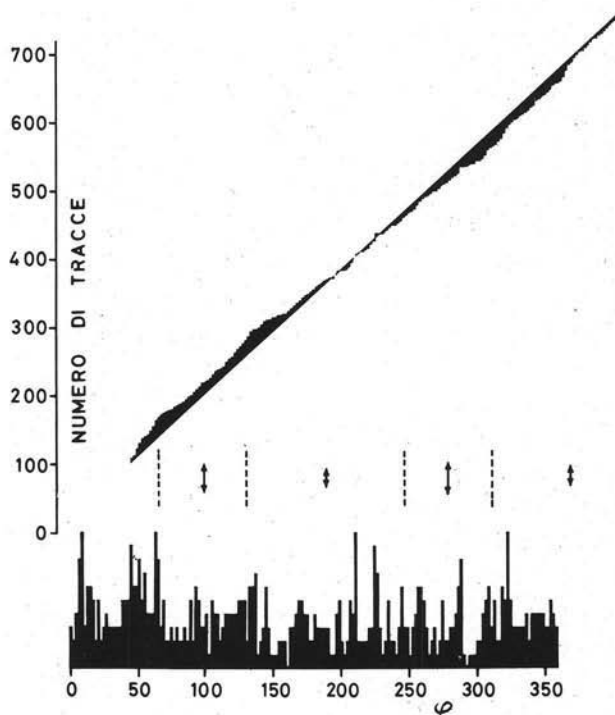


Fig. 5. — Istogramma e diagramma integrale della distribuzione azimutale delle tracce del campione 0001. Tracce indotte. Dose dell'irraggiamento circa  $4 \times 10^{10}$  n/cm<sup>2</sup>. Numero di eventi 658. Attacco di 30' in HF 40% a 40° C.

Nelle Figg. 2 e 3 sono visibili gli istogrammi e i diagrammi integrali in funzione dell'angolo azimutale del campione 0001 attaccato in HF 40% a 40° C per 5 minuti (Fig. 2) e nuovamente attaccato per 25 minuti, per un totale di 30 minuti

(Fig. 3). Nei diagrammi integrali presentati le rette inclinate sono le curve teoriche corrispondenti a una distribuzione rettangolare. Si osservano deviazioni significative da questa curva teorica e anche una asimmetria (presenza di una prima armonica). Oltre ad essa si nota una struttura più fine. Nelle Figg. 4a e 4b abbiamo rappresentato la distribuzione delle tracce delle Figg. 2 e 3 in funzione di  $\cos^2\vartheta$  dove  $\vartheta$  è l'angolo zenitale. La distribuzione menzionata dovrebbe essere proporzionale a  $\sin\vartheta \times \cos\vartheta$  se fosse isotropa; usando come variabile  $\cos^2\vartheta$  dovrebbe essere rettangolare. Per attacchi di breve durata (5') l'anisotropia e l'asimmetria sono molto forti; aumentando il tempo di attacco il fenomeno diminuisce. Evidentemente la velocità di attacco dipende dalla direzione. Ma, anche per gli attacchi di durata « standard » utilizzati per le misure di densità superficiale delle tracce per il calcolo dell'età, il fenomeno dell'anisotropia è evidente.

Nella Fig. 5 si può vedere l'istogramma e il diagramma integrale per le tracce di fissione dell' $^{235}\text{U}$  nella muscovite 0001. Questa figura ha un aspetto molto simile alla Fig. 3 relativa alle tracce fossili dello stesso campione. Abbiamo ottenuto risultati simili per tutti i campioni presi in esame. Tutti i risultati fino ad ora mostrati provano che l'efficienza di registrazione dei frammenti di fissione dipende dalla direzione nella quale è avvenuta la fissione.

Per tentare di valutare quantitativamente il fenomeno abbiamo fatto, in prima approssimazione; l'analisi armonica della distribuzione azimutale delle tracce. Le curve disegnate nelle Figg. 6 e 7 sono la somma delle armoniche significative calcolate con i dati sperimentali. Se si fa corrispondere il massimo delle curve (retta tratteggiata superiore) al numero medio delle tracce che si conterebbero se la distribuzione fosse uniforme, ossia se l'efficienza fosse indipendente dall'angolo, possiamo dedurre che la perdita di conteggi è dell'ordine del 30 %. Considerando che nelle distribuzioni secondo l'angolo azimutale si può notare una struttura fine che l'analisi armonica non è in grado di registrare, la perdita di conteggi può essere maggiore del 30 %. Aumentando il tempo di attacco si ha soltanto una diminuzione nell'ampiezza della prima armonica (Figg. 6a e 6b). Come prima conseguenza dei nostri risultati sperimentali, si può affermare che l'efficienza della muscovite come detector di tracce rivelate di frammenti di fissione avvenute al suo interno non è del 100 %, valore indicato da alcuni Autori. Discutiamo a questo punto ciò che questo significa per il problema della datazione delle rocce.

Come già abbiamo detto, il presupposto per la datazione è che la costante di proporzionalità tra il numero di tracce che attraversano la superficie in esame e sono state rivelate e il numero di fissioni esistenti per unità di volume sia lo stesso nel caso dell' $^{235}\text{U}$  e dell' $^{238}\text{U}$ .

Un confronto tra le analisi armoniche relative alle tracce fossili e alle indotte permette di concludere, in prima approssimazione, che non c'è differenza (Figg. 6 e 7). D'altra parte vari ricercatori hanno già osservato l'effetto di « fading » delle tracce fossili che conduce ad età apparenti inferiori a quelle reali. In conseguenza di ciò furono elaborate varie tecniche di correzione che potrebbero correggere anche

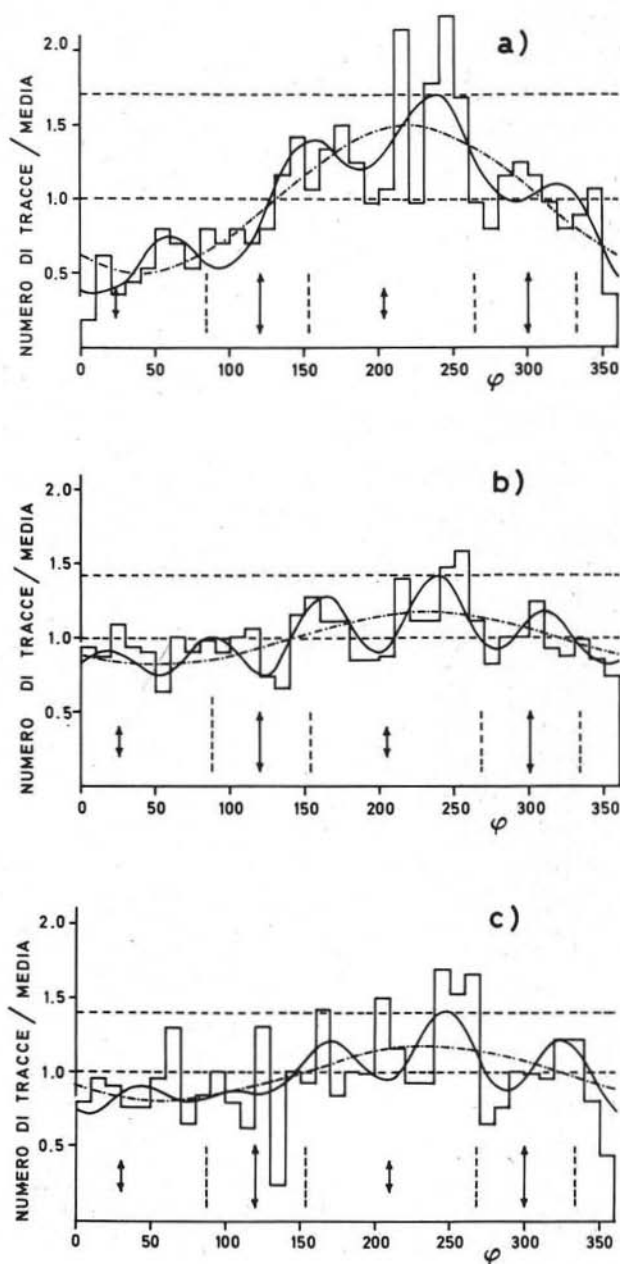


Fig. 6. — Analisi armonica della distribuzione azimutale delle tracce del campione 0001: *a*) 404 eventi. Tracce fossili. Attacco di 5' in HF 40 % a 40° C; *b*) 681 eventi. Tracce fossili. Attacco di 30' in HF 40 % a 40° C; *c*) 658 eventi. Tracce indotte. Attacco di 30' in HF 40 % a 40° C. La curva continua è la somma delle armoniche significative. La curva a tratti e punti rappresenta la prima armonica. Nelle Figg. *a*, *b* e *c* la retta tratteggiata inferiore rappresenta la media di tracce per intervallo normalizzata ad 1, la superiore è segnata al livello del massimo della curva somma delle armoniche significative. L'area compresa fra le due rette è proporzionale al numero minimo dei conteggi perduti.

il fenomeno osservato in questo lavoro. In effetti tutte le tecniche di correzione dell'età sono basate sulla misura di qualche parametro delle tracce, come la lunghezza media o la larghezza media. L'effetto di « fading » naturale è stato simulato misurando la relazione tra la variazione del parametro scelto e la densità superficiale delle tracce in campioni riscaldati artificialmente. Tenendo presenti queste considerazioni, probabilmente il fenomeno da noi osservato non conduce a conseguenze sulla datazione.

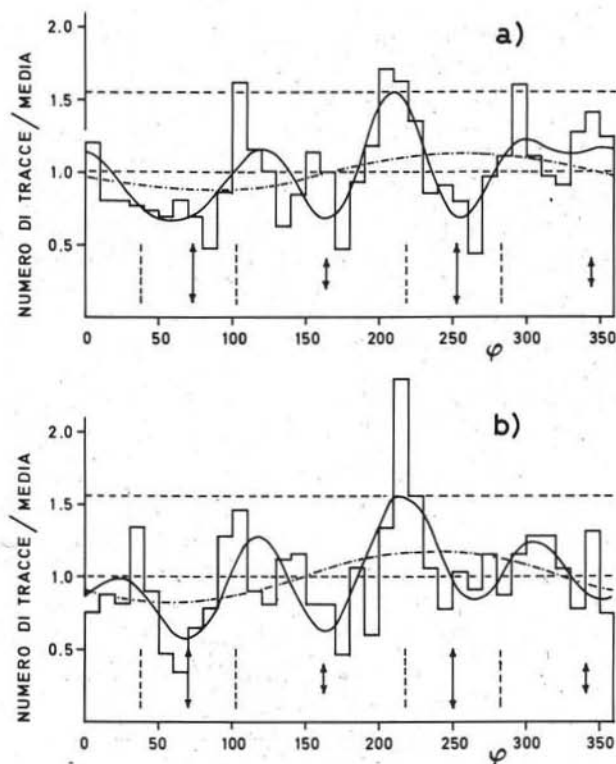


Fig. 7. — Analisi armonica della distribuzione azimutale delle tracce del campione FT 22: a) 655 eventi; tracce fossili. b) 578 eventi; tracce indotte. Dose dell'irraggiamento circa  $1 \times 10^{17}$  n/cm<sup>2</sup>. I campioni sono stati attaccati per 30' in HF 40 % a 40° C. Le rette orizzontali tratteggiate hanno lo stesso significato di quelle della Fig. 6.

I nostri risultati aprono una nuova possibilità nello studio delle caratteristiche dei solidi: una analisi dettagliata e più efficace dell'analisi armonica potrà fornire preziose informazioni sulle direzioni preferenziali dei cristalli. Infatti le distribuzioni angolari, risultato delle nostre misure, presentano picchi piuttosto stretti che, opportunamente analizzati, potranno indicare valori ben determinati per le dire-



zioni del cristallo che corrispondono ad alta efficienza nel processo registrazione del frammento di fissione-rivelazione della traccia.

#### *Ringraziamenti*

Gli Autori desiderano ringraziare DINVANILDE DALL'OGGIO dell'Istituto di Fisica dell'Università statale di Campinas e GRAZIELLA RENZONI dell'Istituto di Fisica dell'Università di Pisa per la cura avuta nell'esecuzione delle misure e PIERO AGOSTINI del Laboratorio di Geocronologia e Geochimica Isotopica del C.N.R. di Pisa per la precisa realizzazione grafica. Ringraziano inoltre GIUSEPPINA FORNACA-RINALDI del C.N.E.N. per la preziosa collaborazione.

#### BIBLIOGRAFIA

- SILK E. C. H. and BARNES R. S. (1959) - *Examination of fission fragment tracks with an electron microscope*. Phil. Mag., 4, 970-972.
- PRICE P. B. and WALKER R. M. (1962) - *Chemical Etching of charged Particle Tracks in Solids*. J. Appl. Phys., 33 (12), 3407-412.
- PRICE P. B. and WALKER R. M. (1963) - *Fossil Tracks of charged Particle in Mica and the Age of Minerals*. J. Geoph. Res., 68 (16), 4847-862.
- FLEISCHER R. L., PRICE P. B., WALKER R. M. and HUBBARD E. L. (1963) - *Track registration in various Solid-State Nuclear Track Detectors*. Phys. Rev., 133A, 1443-1449.