

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

INIS-mf-- 1566

**ESTUDO E APLICAÇÃO DA DOSIMETRIA  
TERMOLUMINESCENTE NA DATAÇÃO**

**MASSAHIRO MIYAMOTO**

*Tese apresentada ao Instituto  
de Física da Universidade de  
São Paulo para a obtenção do  
título de mestre em ciências*

**INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA · INSTITUTO DE FÍSICA DA USP  
SÃO PAULO  
1973**

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

ESTUDO E APLICAÇÃO DA DOSIMETRIA  
TERMOLUMINESCENTE NA DATAÇÃO

ORIENTADOR

Prof. Dr. SHIGUEO WATANABE

MASSAHIRO MIYAMOTO

Tese apresentada ao  
Instituto de Física  
da Universidade de  
São Paulo para a ob-  
tenção do título de  
Mestre em Ciências.

INSTITUTO DE ENERGIA ATÔMICA      INSTITUTO DE FÍSICA DA USP

SÃO PAULO

-1 973-

RIA

OTO

stituto  
de de  
ão do  
ências

USP

AO PAPAI

A MAMĀE

A HISSAE

A TIEKO

AO TOYOHIRO

## AGRADECIMENTOS

Dada a natureza do presente trabalho, numerosas instituições e pessoas participaram na sua elaboração. Particularmente, expressamos os nossos agradecimentos

Ao Prof. Dr. Shigueo Watanabe pela oportunidade de pesquisa, pela paciente e segura orientação na nossa formação, pelo interesse ao presente trabalho;

Ao Prof. Dr. Rômulo Ribeiro Pieroni, Superintendente do Instituto de Energia Atômica pelas facilidades concedidas na elaboração deste trabalho e pelo incentivo dado ao desenvolvimento das pesquisas em termoluminescência e às suas aplicações;

À Profa. Dra. Luciana Pallestrini, do Museu Paulista da Universidade de São Paulo, pela cessão das peças arqueológicas, pela indicação de várias referências bibliográficas e pelas facilidades concedidas na pesquisa de campo no sítio arqueológico Almeida;

À Profa. Dra. Nobue Miyazaki, do Instituto de Pré História da Universidade de São Paulo, pela cessão de peças arqueológicas e pelas amostras de solos de numerosos sítios arqueológicos;

Ao prof. Dr. Koji Kawashita, do Instituto de Geociências da Universidade de São Paulo, pela análise dos teores de potássio em várias peças;

À Comissão Nacional de Energia Nuclear pelo auxílio na compra de equipamentos;

Ao Centro de Geocronologia do Instituto de Geociências da Universidade de São Paulo pelas facilidades concedidas na análise das amostras;

Ao Departamento de Biologia do Instituto de Biociências da Universidade de São Paulo pela permissão de utilizar a fonte de Césio 137;

Ao Departamento de Geomorfologia e Pedologia do Instituto de Geografia da Universidade de São Paulo pelas indicações de técnicas de análises;

Ao prof. Dr. Gian M.A.A. Sordi pelo apoio, pelo incentivo e numerosas discussões e sugestões úteis durante a realização do trabalho;

À profa. Laura Sordi pela dedicação, pelo apoio e pelas inúmeras e valiosas críticas e sugestões ao trabalho;

À profa. Dra. Marília Teixeira Cruz pelo cuidado com que acompanhou as diversas etapas da redação bem como pelo incentivo e apoio constante;

Ao prof. Dr. Toshiyuki Nakajima pelas proveitosas discussões e sugestões em várias etapas do presente trabalho;

Ao prof. Dr. Michael R. Mavhugh pelas sugestões durante a realização do trabalho;

Às professoras Agueda V. de Moraes, Vera Penteado Coelho, Philomena Chiara e Silvia Maranca pela cessão de várias peças arqueológicas e pelas numerosas amostras de solos;

À profa. Idelma Freitas Paquasi pela cuidadosa revisão das referências bibliográficas;

Ao técnico Henrique Monteiro Alves pela constante e eficiente assistência aos vários equipamentos eletrônicos;

À Eva Furnari pelo auxílio na confecção das figuras;  
Ao sr. Alvaro Seixas pelo esmero nos trabalhos de fotografia;

Aos srs. Blaird Pecorari, Severino Elias de Lima e Valdemar Pereira pela dedicação e presteza nos trabalhos de impressão e de fotolitos;

Às bibliotecárias da Biblioteca Central da USP pela cuidadosa orientação nas pesquisas bibliográficas;

Ao pessoal científico e técnico da DIEN, DPRD, DAREI, DRQ, DRB, DEF e DIDC que prestaram sua colaboração em diferentes partes do trabalho;

E antes de finalizar, queremos ressaltar e agradecer de modo especial a Marilene Breves Zuffo pela dedicação, pelo carinho e pelo apoio com que acompanhou a parte final do trabalho;

Aos colegas e amigos pelo estímulo e apoio durante o desenvolvimento deste trabalho.

## RESUMO

Foi feito o estudo de dois métodos de datação por termoluminescência: inclusão e sensibilização. A dose acumulada foi obtida com 20% de desvio pelo método da sensibilização e com 10% pelo método da inclusão.

Estudou-se uma nova maneira de se conhecer a dose acumulada e determinaram-se idades de peças arqueológicas já datadas pelo método do carbono 14, obtendo-se resultados com desvio de 20%. A causa desse desvio é, em parte, devido a erros na determinação da taxa de dose.

A taxa de dose, cujo conhecimento é fundamental na datação pelo método da termoluminescência, foi determinada a partir da contagem da radiação alfa emitida pelos radionuclídeos das séries do urânio e do tório existentes nas peças e no solo onde elas se achavam. Foi encontrado para este valor, cerca de 170 mrad/ano. Além disso, estudaram-se as variações das taxas de doses de numerosos sítios arqueológicos em diferentes níveis estratigráficos utilizando dosímetros termoluminescentes de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de  $\text{LiF:Mg}$  (TLD-100). Os resultados oscilam entre  $165 \pm 35$  e  $290 \pm 30$  mrad/ano.

A possibilidade de se utilizar, na datação, o quartzo extraído de solo queimado encontrado em sítios arqueológicos foi estudada utilizando materiais do sítio Almeida, localizado no município de Piraju. Concluiu-se que, nas datações, o solo queimado pode ser utilizado como material complementar

cerâmicas e urnas e em casos de existência de quantidades apreciáveis de carvões, há possibilidade de se estabelecer um melhor interrelacionamento entre o método da termoluminescência e o método do carbono 14.

A técnica de extração do quartzo de peças arqueológicas foi refinada tendo em vista melhorar, entre outras características, a reprodutibilidade da curva de emissão do quartzo. Esta reprodutibilidade é importante pois dela depende, em parte, a determinação da dose acumulada. Foram conseguidos resultados com desvios de 0,5 a 4,5%.

Foram feitas também, datações de numerosas peças arqueológicas brasileiras, argentinas e peruanas pelo método da termoluminescência.



## ABSTRACT

Two methods of TL dating were studied: inclusion and sensitization. The natural dose was determined to within 20% by the sensitization method and to within 10% by the inclusion method. A new technique was developed to determine the natural dose and the ages of archaeological samples previously dated by the C-14 method were determined to within 20%. This error is partially caused by errors in dose rate determination.

The dose rate was obtained by counting the alpha radiation emitted by radionuclides of the U and Th series. The result obtained is about 170 mrad/year.

Various archaeological site dose rates were measured using  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  and  $\text{LiF}:\text{Mg}$  (TLD-100). The rates ranged from  $165 \pm 35$  to  $290 \pm 30$  mrad/year.

The possibility of TL dating using quartz extracted from burned soil was studied using material from the Almeida archaeological site. It was concluded that burned soil can be used as a material complementary to ceramics pieces for TL dating. In cases where the quantity of charcoal at a site is large, there is the possibility of making a better intercomparison between results from TL dating and C-14 dating.

The technique for extracting quartz from archaeological samples was refined to improve several TL characteristics for example, reproducibility of the quartz glow curve.

The results obtained show errors from 0,5 up to 4,5% .

The ages of numerous brazilian, argentine and peruvian archaeological samples were determined by the inclusion method.

## Í N D I C E

CAPÍTULO I	
CONSIDERAÇÕES GERAIS	1
I.1 Aspectos dosimétricos	1
I.2 Aspectos arqueológicos	4
I.2.1 Sítios arqueológicos	4
I.2.2 Materiais encontrados nos sítios arqueológicos	5
I.2.3 Tipos de datações	6
I.2.3.1 Datação pelo método do carbono 14	7
I.2.3.2 Datação pelo método da termoluminescência	8
I.3 Objetivos do presente trabalho	8
CAPÍTULO II	
DATAÇÃO POR TERMOLUMINESCÊNCIA	10
II.1 Modelo simples da termoluminescência	10
II.2 Principais características da termoluminescência	12
II.2.1 Curva de emissão	13
II.2.2 Estabilidade	14
II.2.3 Sensibilidade	15
II.2.4 Curva da resposta TL à exposição	15
II.2.5 Dependência da resposta termoluminescente com a energia da radiação	16
II.3 Princípios de datação por termoluminescência	18
II.3.1 Considerações gerais	18
II.3.2 Tipos de medidas	19

II.3.3	Métodos de datação por termoluminescência	20
II.3.3.1	Método da inclusão	21
II.3.3.2	Método da sensibilização	22

### CAPÍTULO III

	DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DOSE E DA DOSE ACUMULADA	25
III.1	Teores de urânio, tório e potássio em um solo de composição média	25
III.2	Atividade dos elementos urânio, tório e potássio no solo	27
III.3	Energia liberada pelos radionuclídeos naturais	28
III.4	Cálculo da dose anual para o solo de composição média	30
III.5	Determinação do teor de urânio e de tório a partir da detecção da radiação alfa emitida por uma amostra	32
III.6	Determinação direta da taxa de dose	44
III.6.1	Filme dosimétrico	45
III.6.2	Dosímetro radiofotoluminescente	46
III.6.3	Dosímetro termoluminescente	46
III.7	Determinação da dose acumulada no quartzo	47

### CAPÍTULO IV

	EQUIPAMENTOS, MATERIAIS E MÉTODOS	50
IV.1	Sistema de leitura termoluminescente	50
IV.1.1	Detetor termoluminescente da HARSHAW, modelo 2 000A	53

IV.1.2	Picoamperímetro integrador automático modelo 2000 B	54
IV.1.3	Registrador modelo G 2500 da VARIAN	57
IV.2	Sistema de detecção alfa	57
IV.3	Separador magnético	59
IV.4	Materiais	61
IV.4.1	Materiais utilizados na determinação da dose acumulada	61
IV.4.2	Temperatura alcançada pela cerâmica, urna e solo queimado	62
IV.4.3	Alcance das radiações no SiO <sub>2</sub>	65
IV.4.3.1	Cálculo do alcance da radiação alfa no SiO <sub>2</sub>	66
IV.4.3.2	Cálculo do alcance da radiação beta no SiO <sub>2</sub>	66
IV.4.4	Materiais utilizados na determinação da taxa de dose	67
IV.5	Métodos	68
IV.5.1	Método de preparação das amostras de quartzo para determinar a dose acumulada pela peça arqueológica	68
IV.5.2	Método de irradiação	70
IV.5.3	Métodos de preparação dos dosímetros termoluminescentes para determinação direta da taxa de dose	71
IV.5.4	Método de preparação do detetor ZnS para o sistema detetor alfa	72
	 CAPÍTULO V	
	RESULTADOS	74

V.1	Estudo de algumas propriedades termoluminescente características do quartzo extraído dos solos, urnas e cerâmicas	74
V.1.1	Curva de emissão ("glow curve")	75
V.1.2	Estudo da reprodutibilidade da curva de emissão	77
V.1.3	Estudo da variação da resposta termoluminescente do quartzo tratado com processos químicos diferentes	78
V.1.4	Estudo da variação da resposta termoluminescente com a exposição à radiação gama	80
V.2	Estudo das taxas de dose de sítios arqueológicos	82
V.2.1	Construção da curva de calibração para a leitura dos dosímetros termoluminescentes de TLD-100 e de $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	82
V.2.2	Estudo da taxa de dose em diferentes níveis estratigráficos de um sítio arqueológico	83
V.2.3	Estudo da variação da taxa de dose em vários sítios arqueológicos	86
V.3	Estudo da datação pelo método da inclusão e comparação com o método do carbono 14	87
V.3.1	Datação de cerâmica	87
V.3.2	Datação de solo queimado	92
V-4	Estudo da datação pelo método da sensibilização e comparação com o método da inclusão.	94
V-5	Datações de peças oriundas de sítios arqueológicos do Brasil, da Argentina e do Peru pelo método da inclusão	97

	<b>CAPÍTULO VI</b>	
	<b>CONCLUSÕES E SUGESTÕES</b>	<b>100</b>
<b>VI.1</b>	<b>Conclusões</b>	<b>100</b>
<b>VI.2</b>	<b>Sugestões para trabalhos futuros</b>	<b>102</b>
	<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS</b>	<b>103</b>

## CAPÍTULO I

### CONSIDERAÇÕES GERAIS

Neste capítulo, descrevem-se alguns aspectos relativos ao processo de interação da radiação com a matéria e a necessidade de se estabelecer meios de se medir seus efeitos. Paralelamente, desenvolvem-se noções básicas de dosimetria das radiações e de arqueologia para melhor compreensão dos demais capítulos. Por fim, apresentam-se os objetivos deste trabalho.

#### I.1 ASPECTOS DOSIMÉTRICOS

A descoberta da radiação ionizante e a sua crescente aplicação em pesquisas nas diversas áreas científicas tais como Física, Química, Biologia, Engenharia, Medicina etc. foi acompanhada da descoberta de efeitos biológicos da radiação, muitos dos quais indesejáveis aos organismos vivos em particular ao homem.

Surgiu assim, a necessidade de se construir dispositivos que permitam avaliar a quantidade de energia incorporada pela matéria (dose absorvida) quando exposta a um campo de radiação. Esses dispositivos foram denominados DOSÍMETROS.

Até bem pouco tempo, os dosímetros mais utilizados



eram as emulsões fotográficas, os contadores GM e as câmaras de ionização ligadas a leitoras do tipo pulso ou corrente contínua. Recentemente, tem havido progressos consideráveis no desenvolvimento de novos dosímetros, em particular daqueles baseados nos cristais sólidos.

Esses cristais, quando expostos a campos de radiação, apresentam em diversas propriedades, variações mensuráveis que dependem da dose absorvida ou da exposição, tais como (1,2):

- a) coloração ou descoloração
- b) radiofotoluminescência (RFL)
- c) degradação da luminescência
- d) ressonância de spin de elétron
- e) termoluminescência (TL)
- f) variação da condutividade
- g) emissão exoeletrônica etc.

Das propriedades acima mencionadas, a RFL e a TL vem sendo estudadas na Divisão de Física do Estado Sólido do Instituto de Energia Atômica desde 1969 no que tange a parte básica do fenômeno, bem como a sua aplicação na dosimetria da radiação (1,3,4,5,6,7).

A RFL consiste na variação da emissão fluorescente do material depois de ser irradiado com raios X ou gama (6). A irradiação produz na região da luz ultravioleta bandas de absorção devido a diversos tipos de centros induzidos pela radiação nos cristais. A luminescência produzida pela excitação de alguns desses centros com luz ultravioleta é proporcio

nal ao número de centros criados e este por sua vez é proporcional à exposição recebida dentro de um certo intervalo de exposição. Logo, a luminescência é proporcional a exposição recebida.

As propriedades termoluminescentes dos cristais estão relacionadas ao seguinte fenômeno<sup>(1,2)</sup>: quando um cristal iônico, previamente exposto a um feixe de partículas direta ou indiretamente ionizante, é aquecido, verifica-se uma emissão luminosa que é adicional à emissão térmica normal. Um segundo aquecimento do cristal logo após o primeiro mostra apenas a emissão térmica.

A esse fenômeno da emissão luminosa adicional, dá-se o nome de TERMOLUMINESCÊNCIA (TL) e os materiais que a apresentam são conhecidos como FÓSFOROS TERMOLUMINESCENTES ou simplesmente FÓSFOROS.

Como a variação da emissão luminosa adicional é função da exposição, a termoluminescência pode ser utilizada para determinar a dose absorvida ou a exposição sofrida pelos materiais.

Do ponto de vista do efeito biológico, é necessário conhecer a dose absorvida com a maior precisão possível na prática, saber determinar tanto as baixas como as altas doses e relacioná-las com possíveis efeitos biológicos. Estas necessidades tem introduzido técnicas bastante refinadas e equipamentos extremamente sensíveis que aliadas a maior precisão das leituras e melhor sensibilidade dos dosímetros TL quando comparados com os tradicionais, abriram a perspectiva de se utilizar a dosimetria termoluminescente (TLD) em outras áreas

tais como Arqueologia, Medicina, Agricultura e Geocronologia. Essa nova perspectiva contribuiu consideravelmente para a compreensão de vários problemas, bem como o melhoramento de técnicas e processos específicos dentro de cada área. Por exemplo, a aplicação na Arqueologia por meio de datação de peças tem permitido a melhor compreensão do comportamento de um agrupamento étnico num meio, no decorrer do tempo.

## I.2 ASPECTOS ARQUEOLÓGICOS

Com a finalidade de se ter uma noção, ainda que superficial, do processo de interação Física- Arqueologia, mais especificamente da termoluminescência com as peças arqueológicas, descrevem-se, a seguir, alguns aspectos arqueológicos fundamentais para o desenvolvimento e avaliação das datações.

### I.2.1 SÍTIOS ARQUEOLÓGICOS

A Arqueologia toma um aspecto cada vez mais importante dentro da ciência humana e seu estudo fundamenta-se, entre outros, nos materiais orgânicos e inorgânicos utilizados pelo homem pré-histórico. Entretanto, muitos desses materiais se perdem irremediavelmente no tempo e no espaço, seja em virtude da perecibilidade natural, como é o caso dos ossos, fibras, madeiras etc., seja pelas condições adversas de preservação tais como alta umidade relativa e temperatura elevada. Os que se conservam tem que ser descobertos e escavados a duras penas.

Este conjunto, material e local, constitui o SÍTIO ARQUEOLÓGICO, isto é, região de extensão mais ou menos restrita, caracterizada pela existência de vários utensílios, vasos, urnas, esqueletos e às vezes, terras queimadas de fogueiras. Os materiais que são encontrados nos sítios arqueológicos constituem o que se chama de EVIDÊNCIAS ARQUEOLÓGICAS.

Exemplos de sítios arqueológicos de litoral são os numerosos sambaquis dispersos em vários pontos do nosso litoral como por exemplo, os de Mar Casado e Maratuã, localizados na ilha de Santo Amaro<sup>(8)</sup>.

Outros exemplos de sítios arqueológicos são os de interior, como as grutas na região de Lagoa Santa, em Minas Gerais, entre as quais estão as grutas de Sumidouro e Maquinê<sup>(8)</sup>; além das grutas, há os sítios arqueológicos de Santarém, da ilha de Marajó, do Parque Nacional do Xingú e do vale do Paranapanema. Fazem parte destes últimos, entre outros, os sítios arqueológicos Fonseca em Itapeva, Alves e Almeida em Piraju e Jango Luiz em Angatuba<sup>(7,9,10)</sup>.

#### 1.2.2 MATERIAIS ENCONTRADOS NOS SÍTIOS ARQUEOLÓGICOS

É enorme a variedade de materiais que podem servir de evidências arqueológicas. Em alguns sítios são encontrados numerosos esqueletos, muitas vezes inteiros<sup>(8)</sup>. Mas as evidências arqueológicas não se constituem apenas de restos de esqueletos, mas também de produtos elaborados pelo homem utilizando como matéria prima, pedras (flechas, armas), fibras (te-

cidos rústicos), barros (cerâmicas, urnas) (8,11).

Assim, nas grutas de Cerca Grande, foram encontrados numerosos esqueletos (8). Em outras grutas foram encontradas gravuras e pinturas, ou ambas combinadas, em superfícies rochosas: estas constituem as chamadas ARTES RUPESTRES, das quais as representantes mais conhecidas do Brasil são as que se encontram nas grutas de Minas Gerais.

Também constituem exemplos de evidências arqueológicas, as não menos famosas cerâmicas de Santarém, integrante dos sítios arqueológicos da Amazõnia. Os sítios do vale do Parapanema são conhecidos pelo fato de apresentarem urnas mortuárias ao lado de cerâmicas e peças líticas (9).

### I.2.3. TIPOS DE DATAÇÕES

As evidências arqueológicas são utilizadas de diferentes maneiras pelas várias ciências na tentativa de solucionar, entre outros, o problema cronológico. O parâmetro evolução temporal, de grande importância para estudos históricos do comportamento de um agrupamento humano, pode ser obtido de modo ABSOLUTO ou de modo RELATIVO, isto é, através da comparação com evidências datadas.

Diversas são as ciências que fornecem os dados relativos, como por exemplo a Linguística, a Antropologia Física, a Etnologia, a Geologia e a Botânica.

As datações absolutas são bastante recentes e a Física é uma das primeiras ciências a fornecer tais dados através do método do carbono 14 e, recentemente, através do método

do da termoluminescência. Estas duas técnicas são na realidade complementares: enquanto a primeira utiliza-se de materiais orgânicos, a segunda utiliza-se de cristais iônicos termoluminescentes.

#### I.2.3.1 DATAÇÃO PELO MÉTODO DO CARBONO 14

Fragmentos de carvão, madeira, turfa, pelos, couros, conchas, ossos e outras matérias orgânicas podem servir para a datação absoluta pelo método do carbono 14. Esta técnica fundamenta-se no seguinte<sup>(8,12)</sup>: o carbono natural apresenta dois isótopos estáveis, o carbono 12 e o carbono 13, e um isótopo radioativo, o carbono 14. Este último é um emissor  $\beta^-$  com energia máxima  $E_{\max}(\beta^-) = 155 \text{ kev}$  e, a sua meia vida é  $5760 \pm 50$  anos determinada pelo National Bureau of Standards em 1961.

Na atmosfera, a razão isotópica  $C^{13}/C^{12}$  é da ordem de  $10^{-3}$  e  $C^{14}/C^{12}$ , da ordem de  $10^{-12}$ . A formação do  $C^{14}$  na atmosfera é consequência da interação de raios cósmicos com o nitrogênio através da reação  $N^{14}(n,p)C^{14}$ , numa taxa média de  $2,5 \pm 0,5$  átomos de  $C^{14}$  por  $\text{cm}^2$  da superfície da terra e por segundo. Logo após a sua formação, o  $C^{14}$  é oxidado e mistura-se com o  $\text{CO}_2$  atmosférico. Nas plantas e nos animais, a razão  $C^{14}/C^{12}$  é aproximadamente a mesma da atmosfera. Após a morte do organismo, a proporção tende a modificar-se, decrescendo a quantidade de  $C^{14}$  em comparação com a de  $C^{12}$ , devido à desintegração natural. Este decréscimo pode ser estimado através da relação:

$$N(t) = N(0) \exp(-\lambda \cdot t)$$

onde  $N(t)$  é o número de átomos de carbono 14 presente na amostra

$N(0)$  é o número de átomos de carbono 14 presente na atmosfera

$\lambda$  é a constante de decaimento do carbono 14

$t$  é a idade da amostra

A validade do método se apoia na hipótese de que a radioatividade específica do  $\text{CO}_2$  do ar tenha permanecido constante no tempo.

#### I.2.3.2 DATAÇÃO PELO MÉTODO DA TERMOLUMINESCÊNCIA

Além dos materiais orgânicos, há os não orgânicos, tais como cerâmica, urna e solo queimado nos sítios arqueológicos. Estes materiais que apresentam na sua composição cristais termoluminescentes, ao ficarem expostos às radiações originárias dos radionuclídeos naturais que se encontram no solo e na própria peça, acumulam energia. Isto possibilita a utilização da termoluminescência na datação absoluta de peças arqueológicas. Esta técnica, utilizada no presente trabalho, será descrita nos próximos capítulos.

#### I.3 OBJETIVOS DO PRESENTE TRABALHO

O presente trabalho tem por objetivo utilizar as técnicas da dosimetria termoluminescente na datação absoluta de peças arqueológicas provenientes de numerosos sítios arqueoló-

gicos.

Além desse objetivo principal, estudaram-se possibilidades de se

1) refinar a separação do quartzo da argila com a finalidade de se diminuir o erro na determinação da dose acumulada;

2) utilizar o quartzo extraído não só de cerâmicas , de urnas mas também de solos queimados encontrados nos sítios;

3) utilizar os dosímetros termoluminescentes, atualmente existentes no mercado, na determinação da taxa de dose produzida pelos radionuclídeos naturais do solo.



## CAPÍTULO II

### DATAÇÃO POR TERMOLUMINESCÊNCIA

Neste capítulo, descreve-se o modelo simples da termoluminescência com a finalidade de se entender, ainda que em nível qualitativo, a emissão luminosa que ocorre ao se aquecer fósforos previamente expostos à radiação.

A seguir descrevem-se algumas características essenciais dos dosímetros termoluminescentes e sua aplicação na datação de peças arqueológicas.

Encerra-se o capítulo descrevendo-se as técnicas de datação por termoluminescência utilizadas neste trabalho.

(13)

#### II.1 MODELO SIMPLS DA TERMOLUMINESCÊNCIA

O mecanismo do fenômeno ainda não está totalmente esclarecido mas, há um modelo simples que pode descrever, qualitativamente, o possível desencadear do processo da emissão termoluminescente.

Do ponto de vista energético, pode-se considerar que num cristal iônico, no estado NORMAL, há uma banda de VALÊNCIA em que todos os níveis permitidos estão ocupados por elétrons e há uma banda de CONDUÇÃO que se encontra vazia. Entre as bandas de valência e de condução há uma faixa de ener-

gia proibida aos elétrons, faixa esta onde as impurezas e as imperfeições existentes no cristal podem dar origem a níveis permitidos metastáveis. Estes níveis podem capturar elétrons (ou lacunas) e recebem o nome de ARMADILHAS.

Quando a radiação incide sobre o cristal, elétrons da banda de valência são levados para a banda de condução deixando nessas lacunas, como ilustrado na figura II-1a. Nesta condição, tanto os elétrons como as lacunas podem vaguear pelo cristal até se recombinarem ou serem capturados pelas armadilhas (figura II-1a). Quando capturados, os elétrons permanecem nesses estados metastáveis até receberem energia suficiente para serem liberados. Uma vez livres, os elétrons podem ser

- 1) recapturados nas armadilhas (figura II-1b)
- 2) recombinados com as lacunas armadilhadas (figura II-1c)
- 3) capturados pelos chamados centros de recombinação.

Em qualquer das alternativas acima, pode haver a emissão de fótons. Mecanismo análogo é válido para uma lacuna caso ela seja capturada por uma armadilha e posteriormente liberada. Em virtude dessa equivalência, apresenta-se apenas o mecanismo para elétrons na figura II-1.

Para que o elétron ou a lacuna sejam liberados da armadilha, é necessário fornecer-lhes, no mínimo, uma energia conhecida como PROFUNDIDADE DA ARMADILHA.

O número de fótons emitidos é proporcional, dentro de um certo intervalo de exposição, à população de elétrons

nas armadilhas e esta é proporcional à exposição recebida pelo cristal. Portanto, o número de fótons é proporcional à exposição. Além disso, pelo modelo, observa-se que o aquecimento pode levar o cristal ao estado inicial e isto permite determinar a exposição recebida pelo cristal à partir de um certo instante.

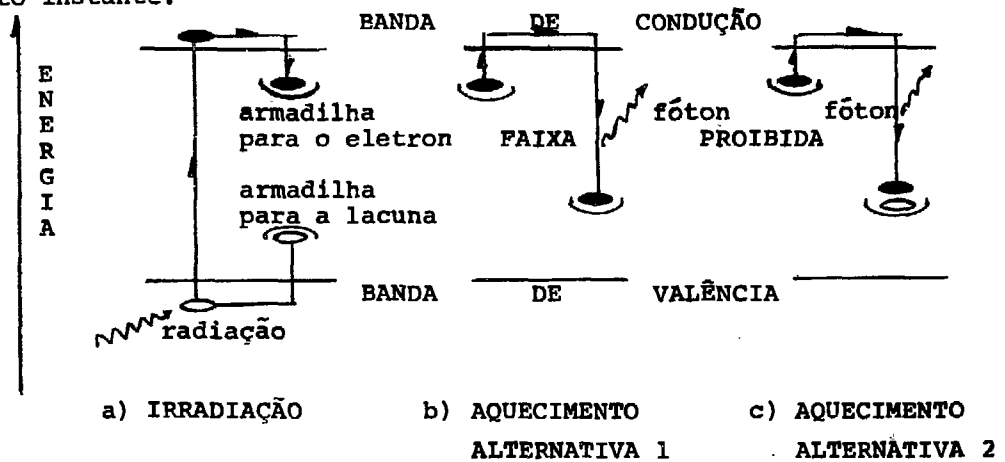


figura II-1 Modelo simples da termoluminescência

## II.2. PRINCIPAIS CARACTERÍSTICAS DA TERMOLUMINESCÊNCIA

Várias são as características da termoluminescência mas, as que interessam ao presente trabalho são:

- 1) curva de emissão ("glow curve")
- 2) estabilidade
- 3) sensibilidade
- 4) resposta termoluminescente à dose
- 5) dependência da termoluminescência com a energia da radiação.

### II.2.1. CURVA DE EMISSÃO ("GLOW CURVE")

Os fótons produzidos durante o aquecimento do cristal, previamente irradiado, são coletados em uma válvula foto multiplicadora. Há, deste modo, a produção de uma corrente que pode ser medida num eletrômetro ou num integrador de carga. Pode-se ligar ao eletrômetro um registrador para se obter uma curva da corrente elétrica em função do tempo ou da temperatura de aquecimento. A curva que resulta da luz emitida pelo fósforo irradiado, devido ao aquecimento, em função do tempo de aquecimento é denominada CURVA DE EMISSÃO (GLOW CURVE).

Uma curva de emissão típica, exceto em casos raros, é composta de dois, três ou mais picos como ilustrado na figura II-2. Cada pico ocorre em torno de uma dada temperatura  $T_p$  que caracteriza cada material ou fósforo termoluminescente e corresponde a um grupo de armadilhas de energia  $E$ , em relação ao fundo da banda de condução. Essa energia  $E$  é denominada profundidade da armadilha ou energia de ativação e determina  $T_p$ . Quanto maior for o valor de  $E$ , tanto mais estável é a armadilha quanto à liberação do elétron nela aprisionado. A altura de cada pico depende da dose absorvida ou da exposição, portanto, ela pode ser utilizada para a leitura da dose, uma vez calibrado o fósforo.

A integral da TL em função do tempo de aquecimento (área sob a curva) é proporcional à termoluminescência e pode também ser usada como medida da TL e portanto da exposição.

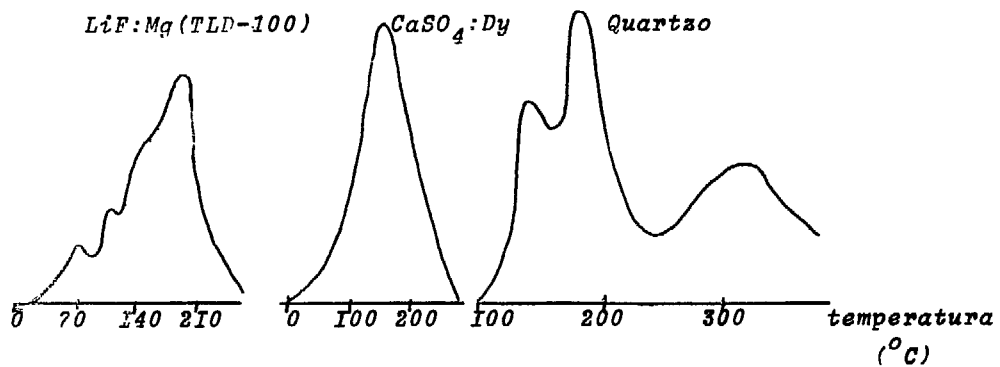


Figura II - 2 Curva de emissão de diferentes materiais termo luminescentes

### II.2.2 ESTABILIDADE

A uma dada temperatura absoluta  $T$ , a probabilidade de liberação do elétron da armadilha é igual a

$$p = S \cdot \exp(-E/kT)$$

onde

$E$ ... profundidade da armadilha em energia contada a partir da banda de condução (armadilha de elétrons) ou da banda de valência (armadilha de buracos)

$S$ ... fator de frequência

$k$ ... constante de Boltzmann

$T$ ... temperatura absoluta

Portanto, a uma dada temperatura T, p mede a instabilidade da armadilha, isto é, quanto maior E, mais estável será a armadilha, pois menor será a probabilidade do elétron ser liberado. Para os propósitos deste trabalho, é importante que o dosímetro tenha boa estabilidade na temperatura do solo e isto sugere a utilização dos picos de alta temperatura. Quando se utiliza a área debaixo da curva de emissão como medida de TL, é necessário verificar se não foram incluídos os picos instáveis.

#### II.2.3. SENSIBILIDADE

Por sensibilidade, entende-se a quantidade de luz emitida por unidade de massa do material termoluminescente e de exposição. A sensibilidade do fósforo TL pode ser aumentada se submetemos o fósforo a uma exposição elevada seguida de um tratamento térmico conveniente. A isto denomina-se SENSIBILIZAÇÃO POR RADIAÇÃO.

#### II.2.4. CURVA DA RESPOSTA TL À EXPOSIÇÃO

O ideal seria o caso em que a resposta TL do fósforo fosse sempre proporcional à exposição, pois isto facilitaria o uso do fósforo como dosímetro e simplificaria a construção da curva de calibração.

A maioria dos materiais TL apresenta porém esta proporcionalidade somente para exposições entre 0 e 500 ou 1000R, dependendo do fósforo. Acima deste valor, em geral, a respos-

ta TL é supralinear, isto é, a resposta cresce mais rapidamente do que a exposição até que, para exposições superiores a MR, a resposta entra na região de saturação, podendo em seguida até decrescer.

Esta curva é essencialmente a curva de calibração ; daí a sua importância na dosimetria TL e, em consequência, na datação.

#### II.2.5. DEPENDÊNCIA DA RESPOSTA TERMOLUMINESCENTE COM A ENERGIA DA RADIAÇÃO

Outro fator que poderia influir na dosimetria TL é a dependência da sensibilidade do fósforo com a energia da radiação e esta se prende principalmente ao fato de haver mais de um processo de interação entre a radiação e a matéria. Nos casos das radiações alfa e beta (partículas diretamente ionizantes), a ionização se processa por colisão enquanto que a radiação gama provoca ionizações que dependem do processo envolvido: se efeitos fotoelétrico ou Compton ou produção de pares. O problema da dosimetria reside no fato de que o coeficiente de absorção da radiação gama ser dependente do processo ( $Z^4$  para o efeito fotoelétrico,  $Z$  para Compton e  $Z^2$  para a produção de pares onde  $Z$  é o número atômico efetivo).

Segundo Spiers<sup>(14)</sup> na região em que a absorção fotoelétrica é dominante e a formação de pares é desprezível, o número atômico efetivo do  $\text{SiO}_2$  pode ser calculado através da expressão

$$\bar{Z}_r^{m-1} = \bar{Z}_1^{m-1} \alpha_1 + \bar{Z}_2^{m-1} \alpha_2 \quad (2.1)$$

enquanto que na região de formação de pares o número atômico efetivo pode ser calculado utilizando-se a expressão

$$\bar{z}_k = \alpha_1 z_1 + \alpha_2 z_2 \quad (2.2)$$

onde

$$\alpha_1 = NP_1 z_1 / n_0 A_1$$

$$\alpha_2 = NP_2 z_2 / n_0 A_2$$

$$n_0 = N(P_1 z_1 / A_1 + P_2 z_2 / A_2)$$

$$m = 4 \text{ (na absorção fotoelétrica)}$$

$$N = \text{número de Avogadro}$$

$$P_1 = \text{fração em peso do elemento } z_1$$

$$P_2 = \text{fração em peso do elemento } z_2$$

$$z_1 = \text{número atômico do Si } (z_1 = 14)$$

$$z_2 = \text{número atômico do } O_2 \text{ } (z_2 = 16)$$

$$A_1 = \text{massa atômica do Si } (A_1 = 28)$$

$$A_2 = \text{massa atômica do } O_2 \text{ } (A_2 = 32)$$

Utilizando as expressões (2.1) e (2.2), obtêm-se  $\bar{z}_r$  igual a  $\bar{z}_k$  e aproximadamente igual a 15 e para esses valores efetivos do número atômico, o efeito fotoelétrico é dominante



em baixas energias até cerca de 100 KeV quando se torna competitivo com o efeito Compton e em seguida desprezível. A produção de pares tem energia limiar de 1,02 MeV e se torna competitivo com Compton para energia da ordem de 15 MeV. Em vista destes processos, há três zonas de energia com processo de interação bem definido.

Como a componente predominante do espectro de raios gama do solo responsável pela indução de TL tem energia superior a 100 Ke e inferior a 3 MeV, isto é, está na zona de Compton, o efeito da energia da radiação gama não é crítico para o presente trabalho.

### II.3. PRINCÍPIOS DE DATAÇÃO POR TERMOLUMINESCÊNCIA

#### II.3.1. CONSIDERAÇÕES GERAIS

As rochas e os solos apresentam diferentes composições e, em geral, podem-se perceber traços de radionuclídeos naturais. As radiações originárias de tais elementos podem induzir TL detetáveis em cristais que se encontram nas rochas, nos solos, nas lavas vulcânicas ou nas peças arqueológicas, tais como cerâmicas e urnas que se encontram enterradas no solo, quando os seus efeitos são acumulados no decorrer de tempo relativamente longo.

A datação de rochas baseada na termoluminescência, foi sugerida em 1953 por F.Daniels e sua aplicação foi estendida à datação de peças arqueológicas<sup>(15)</sup>.

A idéia básica da datação por TL consiste em deter-

minar:

- 1) a dose acumulada na peça arqueológica a ser datada, no decorrer do tempo em que esteve enterrada, através da medida da termoluminescência induzida nos cristais de quarzto contidos na peça.
- 2) a taxa de dose devida aos radionuclídeos existentes na peça, bem como àqueles existentes no meio ambiente em que ela se encontrava, os quais induziram a dose acumulada acima mencionada.
- 3) o quociente da dose obtida em 1 pela taxa de dose obtida em 2, uma vez que este quociente é a idade da peça em questão.

É importante observar que a fabricação de um objeto de cerâmica ou de uma urna passa necessariamente por uma queima a alta temperatura<sup>(15,16)</sup>. Essa queima evidentemente limpa qualquer TL previamente induzida na peça; portanto, a pró-pria queima na fabricação estabelece o marco zero do tempo. Naturalmente, qualquer aquecimento a alta temperatura em época posterior desloca o zero do tempo para o último momento do recozimento.

### II.3.2. TIPOS DE MEDIDAS

As primeiras datações por TL foram relativas, isto é, procurou-se datar peças tendo por padrão peças de idades conhecidas obtidas aproximadamente da mesma região.

Este estágio de datação relativa perdurou até mea-

dos de 1967, tendo sido o método desenvolvido em várias universidades tais como Birmighan, California, Kyoto, Oxford, Wisconsin e Pennsylvania, todas fornecendo resultados com erros superiores a 20% (15).

A fase de datação absoluta teve início em 1967 com Aitken e Tite<sup>(15)</sup> tendo se firmado a partir de 1968 principalmente com Aitken, Zimmermann e Fleming<sup>(15,17,18,19)</sup>. Nesta fase foram desenvolvidos novos métodos para se determinar a dose acumulada; a taxa de dose produzidas pelos radionuclídeos naturais existentes tanto na peça como no meio ambiente em que ela se encontrava, passou a ser determinada utilizando-se dosímetros termoluminescentes bastante sensíveis e sistemas eletrônicos de baixo ruído.

### II.3.3. MÉTODOS DE DATAÇÃO POR TERMOLUMINESCÊNCIA

Pode-se dizer que até o momento, há quatro métodos de datação baseados na TL:

- a) método da inclusão
- b) método dos grãos finos
- c) método da subtração
- d) método da sensibilização

Os três primeiros métodos levam em consideração o alcance das radiações alfa, beta e gama no quartzo e, portanto, as diferentes contribuições das mesmas na dose acumulada; o quarto considera, além do alcance, o fenômeno da sensibilização do quartzo por uma alta exposição.

No presente trabalho são utilizados os métodos da inclusão e da sensibilização cujos princípios serão descritos a seguir.

#### II.3.3.1. MÉTODO DA INCLUSÃO

Este foi o primeiro método da datação absoluta de peças arqueológicas por TL, tendo sido desenvolvido por Aitken Zimermann e Fleming<sup>(15)</sup>. O método baseia-se no cálculo da dose acumulada devido às radiações beta e gama, escolhendo-se grãos de quartzo com dimensões superiores a 100 micra. Para grãos com estas dimensões, a contribuição da radiação alfa na dose acumulada é desprezível porque esta radiação tem pequeno alcance no quartzo. Este pequeno alcance será objeto de cálculo no capítulo IV.

Com essas considerações, a equação a ser utilizada para o cálculo da idade é:

$$\text{idade (anos)} = \frac{\text{dose equivalente a gama (rad)}}{\text{taxa de dose beta e gama (mrad/ano)}}$$

onde dose equivalente a gama ... é a dose de radiação gama que produz a mesma TL que a dose acumulada (rad)

taxa de dose beta e gama ... é a taxa de dose devido às radiações beta e gama emitidas pelos radionuclídeos existentes na peça e no meio em que ela se encontrava (mrad/ano)

### II.3.3.2. MÉTODO DA SENSIBILIZAÇÃO

O estudo da sensibilidade termoluminescente dos fósforos tem demonstrado que há um aumento na sensibilidade quando o cristal sofre uma exposição muito alta (neste trabalho denomina-se esta alta dose de PREDOSE) seguida de um recozimento conveniente.

Este comportamento tem sido descrito por vários autores em diferentes fósforos como por exemplo no fluoreto de lítio por Cameron<sup>(2)</sup>, na fluorita brasileira por Okuno<sup>(3)</sup> e Cruz<sup>(4)</sup>.

Este comportamento dos cristais foi utilizado por Fleming na datação<sup>(19,20)</sup>. Experimentalmente, a dose acumulada é determinada examinando-se a variação da sensibilidade do quartzo, mais precisamente do pico de  $110^{\circ}\text{C}$ <sup>(19)</sup>. Isto é feito da seguinte forma: amostra do quartzo é extraído da peça e é dividida em três alíquotas, ditas 1, 2 e 3.

A alíquota 1 é submetida a uma pre-dose D, recozida a uma temperatura T (da ordem de  $600^{\circ}\text{C}$ ), resfriada rapidamente à temperatura ambiente e, em seguida, submetida a exposição teste  $e_t$ . A leitura desta alíquota fornece uma resposta termoluminescente  $S_{N+\gamma}$ .

A alíquota 2 é recozida a temperatura T, resfriada rapidamente à temperatura ambiente e submetida a exposição teste  $e_t$  igual à da alíquota 1. Observa-se uma resposta termoluminescente  $S_N$ .

A alíquota 3 é submetida à exposição teste  $e_t$  e a

leitura fornece uma resposta termoluminescente  $S_o$ .

Esquemáticamente, o processo pode ser visto na figura II-3

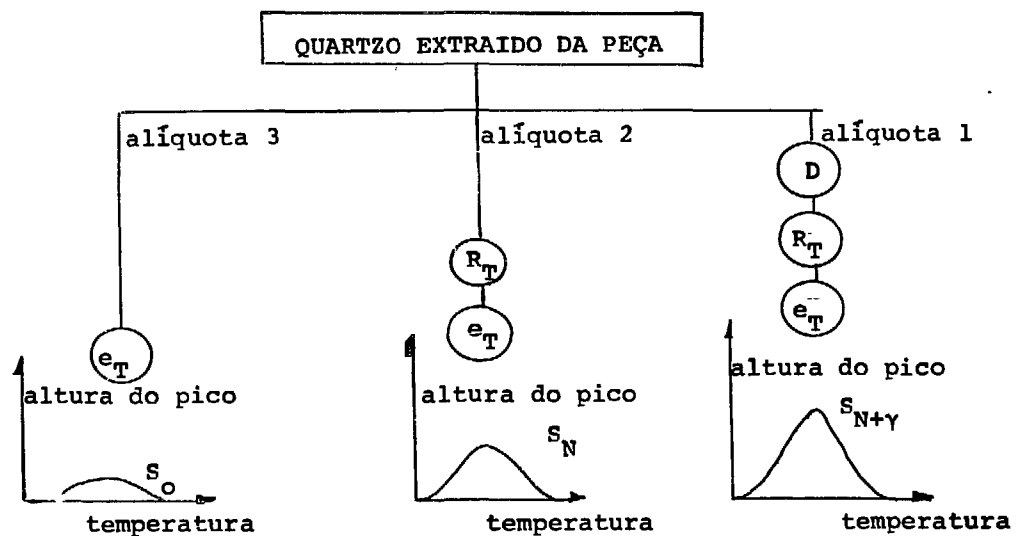


figura II-3 Esquema do método de datação por sensibilização

Pela figura acima, pode-se ver que a variação entre as alíquotas 1 e 2, isto é,  $(S_{N+\gamma} - S_N)$  é devida à dose  $D$ , enquanto que a diferença  $(S_N - S_o)$  entre as alíquotas 2 e 3 é devida a dose natural  $d_N$  (ou dose acumulada) pelo quartzo durante o período que esteve enterrado no solo.

Portanto, pode-se conhecer a dose acumulada pelo quartzo durante o período que esteve enterrado no solo utilizando-se a expressão:

$$\text{dose natural acumulada} = \frac{(S_N - S_o)}{(S_{N+\gamma} - S_N)} \cdot D$$

Considerando-se granulações superiores a 100 micra, o que permitirá desprezar o efeito da radiação alfa, a taxa de dose será somente devida às radiações beta e gama, isto é,  $R_{\beta+\gamma}$ .

Portanto, a idade da peça poderá ser determinada através da expressão

$$\text{idade (anos)} = \frac{(S_N - S_0)}{(S_{N+Y} - S_N)} \cdot \frac{D}{R_{\beta+\gamma}}$$

## CAPÍTULO III

### DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DOSE E DA DOSE ACUMULADA

Os métodos de datação por termoluminescência mencionados, diferem basicamente na consideração do tipo de radiação que induz a dose acumulada e isto conduz a diferentes maneiras de se determinar a taxa de dose.

Assim, a taxa de dose causada por um tipo de radiação está diretamente relacionada com a quantidade de radionuclídeos emissores daquela radiação que existem no meio ambiente em que se encontrava a peça arqueológica.

Neste capítulo procura-se, a partir de uma composição média do solo, determinar a taxa de dose. Isto é importante pois, baseando-se nestes cálculos, escolher-se-á o sistema de detecção da radiação (detetor e sistema de leitura) a ser utilizado na determinação experimental dos teores dos radionuclídeos e os dosímetros para determinar diretamente a taxa de dose.

#### III.1. TEORES DE URÂNIO, TÓRIO E POTÁSSIO EM UM SOLO DE COMPOSIÇÃO MÉDIA

Segundo Aitken e al<sup>(15)</sup>, as radiações alfa, beta e gama, capazes de induzir termoluminescência em escala conside



rável no dosímetro, são provenientes dos radionuclídeos naturais das séries do urânio e do tório e do elemento potássio. Segundo Clark<sup>(26)</sup>, Mayneord et al<sup>(27)</sup>, o conteúdo médio de urânio, tório e potássio no solo terrestre são os valores que se encontram na tabela III-1

TABELA III-1

Conteúdo de tório, urânio e potássio em 100 g. de solo

elemento	quantidade (em gramas)
urânio	$2.10^{-4}$
tório	$1.10^{-3}$
potássio	2,59

O urânio existente no solo apresenta-se na forma dos isótopos  $U^{235}$  e  $U^{238}$  nas porcentagens de 0,72% e 99,2%, respectivamente<sup>(23)</sup>, que dão origem às séries do actínio e do urânio, enquanto que o tório encontra-se como elemento  $Th^{232}$  na porcentagem de 100% que dá origem à série do tório. O potássio radioativo natural  $K^{40}$  aparece na natureza na proporção de 0,0118%<sup>(23)</sup> da abundância natural.

Portanto, as quantidades dos elementos  $U^{235}$ ,  $U^{238}$ ,  $Th^{232}$  e  $K^{40}$  em 100 gramas de solo são os valores que se encontram na tabela III-2

TABELA III-2

Conteúdo de  $U^{235}$ ,  $U^{238}$ ,  $Th^{232}$   
e  $K^{40}$  em 100 gramas de solo

elemento	quantidade ( $\cdot 10^{-4}$ g.)
$U^{238}$	1,99
$U^{235}$	0,01
$Th^{232}$	10,00
$K^{40}$	3,06

III-2 ATIVIDADE DOS ELEMENTOS URÂNIO, TÓRIO E POTÁSSIO NO SOLO

A atividade de um radionuclídeo<sup>(24)</sup> pode ser expressa pela seguinte relação<sup>(25)</sup>:

$$A(t) = \lambda \cdot N(t) \quad (3.1)$$

onde  $A(t)$  ... atividade do radionuclídeo no instante  $t$

$\lambda$  ... constante de decaimento

$N(t)$  ... número de átomos do radionuclídeo no instante  $t$

Considerando que  $\lambda = 0,693/T$  e que  $N(t) = m \cdot N/A$  pode-se escrever (3.1) da seguinte forma:

$$A(t) = (0,693 \cdot m \cdot N) / (T \cdot A) \quad (3.2)$$

onde m ... massa do radionuclídeo  
 T ... meia vida do radionuclídeo  
 N ... número de Avogadro  
 A ... massa atômica do radionuclídeo

Levando em conta a expressão (3.2), a atividade dos radionuclídeos  $U^{238}$ ,  $U^{235}$ ,  $Th^{232}$  e  $K^{40}$  em 100g de solo é:

TABELA III-3

ATIVIDADE DOS RADIONUCLÍDEOS  $U^{238}$ ,  $U^{235}$ ,  $Th^{232}$ ,  $K^{40}$  EM 100g DE SOLO

elemento	massa atômica (gramas)	meia vida (anos)	massa ( $\cdot 10^{-4}$ g)	atividade $10^7$ des./ano
$U^{238}$	238,051	$4,51 \cdot 10^9$	1,99	7,73
$U^{235}$	235,044	$7,10 \cdot 10^8$	0,01	0,25
$Th^{232}$	232,038	$1,41 \cdot 10^{10}$	10,00	12,75
$K^{40}$	40	$1,28 \cdot 10^9$	3,06	249,33

### III.3 ENERGIA LIBERADA PELOS RADIONUCLÍDEOS NATURAIS

Examinando-se o esquema de decaimento das séries do urânio, do tório e do actínio, pode-se calcular a energia média das radiações alfa, beta e gama. Esses valores são apresentados na tabela III-4.

Tendo em vista os valores das atividades dos radionuclídeos naturais existentes em 100 gramas de solo de composição média (tabela III-3) e a energia média das radiações por

TABELA III-4

Energia média (Mev) e percentagem das radiações alfa, beta e gama emitidas pelos nuclídeos naturais do potássio 40 e das séries do urânio, do tório e do actínio.

radiação	série			elemento
	urânio	actínio	tório	potássio
alfa	5,36 (801,02%)	6,06 (609,71%)	5,99 (598%)	
beta máx.	0,99 (576,12%)	0,75 (398,48%)	0,91 (348,56%)	1,322 (89%)
méd.	0,32	0,24	0,26	0,541
gama	0,64 (98,59%)	0,22 (188,21%)	0,92 (206,23%)	1,461 (11%)

obs. na tabela acima, a percentagem corresponde a fração de radiação emitida em cada desintegração do elemento ou da série

elas emitidas (tabela III-4), calculou-se a energia total anual correspondente a cada tipo de radiação. Essa energia será dada pela soma das energias do potássio e das séries do urânio, do tório e do actínio. Os resultados encontram-se na tabela III-5.

TABELA III-5

Energia total anual correspondente às radiações alfa, beta e gama liberadas pelos radionuclídeos naturais contidos em 100 gramas de solo de composição média

série	radiação		
	alfa (.10 <sup>7</sup> Mev)	beta (.10 <sup>7</sup> Mev)	gama (.10 <sup>7</sup> Mev)
urânio	331,89	14,25	4,877
actínio	9,24	0,24	0,10
tório	456,71	11,55	24,19
potássio		120,05	40,06
TOTAL	797,84	146,09	69,23

#### III-4 CÁLCULO DA DOSE ANUAL PARA O SOLO DE COMPOSIÇÃO MÉDIA

Considere-se, como mostra a figura III-1, duas regiões W e V, do solo, que apresentam teores de urânio, de tório e de potássio iguais ao da tabela III-1.

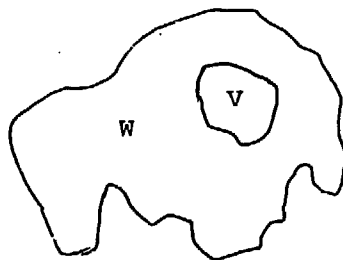


figura III-1 regiões W e V nas quais se distribuem os radionuclídeos.

Os radionuclídeos podem-se distribuir nas regiões V e W de modo

- a) uniforme
- b) não uniforme

Neste último caso, deve-se supor que a energia que sai da região V para W seja a mesma que entra em V de W.

Em ambos os casos, supõe-se que a energia das radiações alfa e beta emitidas sejam totalmente absorvidas pelas duas regiões e que, para a radiação gama, as regiões se encontrem em equilíbrio eletrônico.

Podem-se, então, calcular a energia depositada anualmente em cada grama da região V, isto é, a taxa de dose anual do solo de composição média. Considerando os valores da energia total anual que se encontram na tabela III-5 e lembrando que 1 Mev é igual a  $1,6 \cdot 10^{-6}$  erg e que 1 rad é igual a 100 erg/g, obtêm-se para a taxa de dose os valores que se encontram na tabela III-6.

TABELA III-6

Taxa de dose anual no solo devido aos radionuclídeos naturais.

		radiação		
		alfa	beta	gama
série	urânio	531,02	22,80	7,80
série	actínio	14,79	0,38	0,16
série	tório	730,74	18,48	38,70
elemento	potássio		192,08	64,10
TOTAL		1276,54	233,74	110,76

Imaginando-se a região V como sendo uma peça de cerâmica com 10 ppm de urânio, 2 ppm de tório e 2,59% de potássio, enterrado em um solo com a mesma composição, a dose anual (em mrad) neste fragmento será: 1276,54 mrad de radiação alfa, 233,74 mrad de radiação beta e 110,76 mrad de radiação gama. As duas primeiras doses são produzidas pelos radionuclídeos que se encontram no interior da peça e a última, pelos radionuclídeos que se encontram no solo e na peça. A essas doses, deve-se adicionar 15 mrad produzidas pelos raios cósmicos (23,2).

#### III-5 DETERMINAÇÃO DO TEOR DE URÂNIO E DE TÓRIO A PARTIR DA DETECÇÃO DA RADIAÇÃO ALFA EMITIDA POR UMA AMOSTRA.

Em princípio, os teores de urânio, de tório e de potássio da cerâmica, da urna e do solo podem ser determinados experimentalmente através da detecção e análise das radiações alfa, beta e gama emitidas por aqueles nuclídeos, bem como pelos demais elementos que compõem a série.

A análise espectrométrica da radiação gama, por exemplo, pode fornecer os teores de urânio, de tório e de potássio ou de qualquer radionuclídeo das séries que se originam no urânio ou no tório. A espectrometria gama é vantajosa e versátil pelo fato de permitir o uso de amostras de tamanhos e formas diferentes, sem apresentar problemas de auto-absorção na amostra ou de absorção durante o trajeto entre a fonte emissora e o detetor (28,29). A principal desvantagem deste método consiste no fato de outros nuclídeos, além do potássio e dos

das séries do urânio, do actínio ou do tório apresentarem emissão gama, dificultando a análise do espectro.

A espectrometria da radiação beta apresenta diversos problemas que a tornam pouco praticável para a determinação dos teores de urânio e de tório. Por exemplo, cada emissor beta apresenta energia que se distribui em um espectro, de modo que para vários emissores, tem-se uma soma de espectros, tornando difícil a resolução para cada nuclídeo em função da energia da radiação beta. Além desse problema, há a auto-absorção da amostra e a absorção no trajeto amostra-detetor, o que ocasiona a deformação do espectro original de energia de cada emissor; pode haver também no local da medida, radioisótopos diferentes daqueles que se pretende analisar como por exemplo, carbono 14, trítio etc., que distorcem ainda mais o espectro.

No caso da radiação alfa, o seu uso é extremamente vantajoso, pois as séries naturais são, praticamente, os únicos emissores alfa, isto é, não há influência de radioisótopos estranhos, como no caso das radiações beta e gama e, além disso, apresentam energia bem definida como os emissores gama. Considerando o seu pequeno alcance, a quantidade de amostra necessária para análise é pequena, o que favorece o estudo das peças arqueológicas.

Tendo em vista esses fatores, adotou-se neste trabalho o sistema de detecção da radiação alfa, cujo princípio será explicado a seguir. Examinando-se as séries do urânio e do tório, pode se observar em cada desintegração das séries, 14 emissões distintas de partículas alfas, sendo 8 da série do



urânio e 6 da série do tório. Além disso, o esquema de decaimento da série do tório mostra a emissão de duas partículas alfa em um intervalo de tempo médio de 0,22 segundos provenientes do decaimento do  $\text{Ra}_{86}^{220}$  (meia vida igual a 55 segundos) em  $\text{Po}_{84}^{216}$  (meia vida igual a 0,15 segundos) e deste em  $\text{Pb}_{82}^{212}$  (meia vida igual a 10,64 segundos).

Estas duas radiações constituem o que será denominado de "pares de alfa" que são a base do sistema detetor alfa, que será descrito em detalhes no capítulo IV.

O detetor alfa nos permitirá detetar não só os "pares", mas também o número total de partículas alfa emitidas pelas duas séries.

No caso de um detetor com geometria 4" se todas as emissões alfa saírem da amostra em análise, isto é, se não houver auto absorção da radiação alfa, pode-se notar que a cada par detetado corresponderão 6 partículas alfa da série do tório ou seja, para  $n$  pares de alfa, vale a relação:

$$N(\text{Th emitidas}) = 6 n (\text{pares emitidos})$$

onde  $n$ (pares emitidos)... número de pares de alfa emitidos pela série do tório por unidade de volume e de tempo.

$N(\text{Th emitidas})$  ..... número de partículas alfa emitidas pelos elementos da série do tório por unidade de volume e de tempo.

No presente trabalho, a geometria do detetor utilizado era 2 $\pi$  e neste caso, há necessidade de algumas considerações para se determinar o número de partículas alfa e de "pares de alfa" emitido.

Para tanto, considere-se uma camada de espessura  $d$  do material de densidade  $\rho$  depositado uniformemente sobre a superfície detetora  $XY$  de área útil  $A$ , na qual encontram-se radionuclídeos emitindo, de modo uniforme, partículas alfa de alcance  $R$  no material. Seja na camada, um elemento de volume  $dV = dA \cdot dh$  a uma distância  $h$  da superfície  $XY$  e  $N$  (alfa emitida) o número de partículas emitidas por unidade de volume do material e por unidade de tempo. A figura III-2 ilustra a situação.

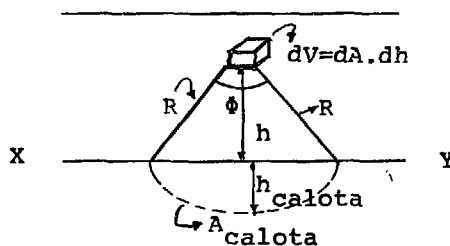


figura III-2 Desenho esquemático para o cálculo do número de partículas alfas emitidas por uma amostra e do alcance da partícula alfa no material emissor, onde  
 $XY$  ... superfície do detetor  
 $dV$  ... elemento de volume do material que contém radionuclídeos emissores de radiação alfa  
 $d$  ... espessura do material depositado sobre o detetor  
 $R$  ... alcance da radiação no material

$h$  ... distância entre o elemento de volume  $dV$  e a superfície do detector.

$A$  ... área útil do detector.

Sendo a geometria do detector  $2\pi$  apenas  $N(\text{alfa emitidas})/2$  será emitida na direção da superfície detetora  $XY$ . Esse número de partículas estará contido na semi-esfera de raio  $R$ . Desse número, apenas as que forem emitidas no ângulo sólido serão detetadas, isto é, as que alcançarem a superfície da calota. Assim, a fração  $f$  do número de partículas detetadas em relação ao número de partículas emitidas na direção da superfície  $XY$  será:

$$f = \frac{A_{\text{calota}}}{A_{\text{semi esfera}}} = \frac{2\pi R \cdot h_{\text{calota}}}{2\pi R^2} = \frac{2\pi R(R-h)}{2\pi R^2}$$

$$\therefore f = 1 - \frac{h}{R}$$

Se a espessura da camada  $d$  for igual ao alcance da radiação alfa, isto é,  $d = R$ , o elemento de volume  $dV$  pode estar a uma distância da superfície  $XY$  que varia de zero até  $d$  e o número total  $N_A$  de partículas emergente por unidade de área da amostra de espessura  $d$  é:

$$N_A = \frac{N(\text{alfa emitida})}{2} \int_{h=0}^{h=d} \left(1 - \frac{h}{R}\right) dh$$

$$N_A = (N(\text{alfa emitida})/2) \cdot (d - d^2/2R) \quad (3.6)$$

Neste cálculo, supos-se que  $A \gg R^2$

As partículas emitidas por elementos de volume a distâncias da superfície XY maiores que o alcance R da radiação no meio emissor não chegam até o detetor. Assim, um material com espessura  $d > R$  dá a mesma contagem que a camada do material com espessura R. Neste caso, a expressão (3.6) pode ser escrita supondo que  $A \gg R^2$ :

$$N(\text{alfa detetada}) = \frac{N(\text{alfa emitida})}{2} \cdot \left( R - \frac{R^2}{2R} \right)$$

$$N(\text{alfa detetada}) = \frac{N(\text{alfa emitida})}{4} \cdot R \quad (3.7)$$

A seguir calcula-se o número de "pares de alfa" que emergem por unidade de área e por unidade de tempo da camada do material de espessura d.

Da figura III-2 pode-se ver que dentro do número de "pares de alfa" emitidos por um elemento de volume  $dV$  na direção da superfície XY, há uma fração em que as duas partículas são emitidas dentro do ângulo sólido  $\phi$ . Pela dupla probabilidade, esta fração é:

$$f = (1/2) (1 - h/R)^2 dV$$

Se  $n$ (pares emitidos) é o número de "pares de alfa"

emitidos por unidade de volume do material na unidade de tempo, então o número de "pares de alfa" contido no ângulo sólido é  $n(\text{pares emitidos}) \cdot (0,5(1 - h/R))^2 dV$ .

Portanto, o número de "pares de alfa" detetado por unidade de tempo e por unidade de área do material de espessura  $d$ , é:

$$N(\text{pares detetados}) = n(\text{pares emitidos}) \int_{h=0}^{h=d} \left(\frac{1}{2}(1 - \frac{h}{R})\right)^2 dh$$

$$N(\text{pares detetados}) = \frac{n(\text{pares emitidos})}{4} \left( d - \frac{d^2}{R} + \frac{d^3}{3R^2} \right) \quad (3.8)$$

Se a espessura  $d$  da camada do material for maior que o alcance  $R$  da radiação alfa, isto é,  $d > R$ , a espessura da camada que influi no número de "pares de alfa" detetados por unidade de tempo e área será  $d = R$  e tem-se:

$$N(\text{pares detetados}) = \frac{n(\text{pares emitidos})}{4} \left( R - \frac{R^2}{R} + \frac{R^3}{3R^2} \right)$$

$$N(\text{pares detetados}) = \frac{n(\text{pares emitidos})}{12} \cdot R \quad (3.9)$$

Se a atividade do solo ou da peça arqueológica for devida unicamente aos elementos da série do tório, a relação entre o número de partículas alfas emitidas e o número de "pares de alfa" será:

$$N(\text{Th emitidas}) = 6.n(\text{Th pares emitidos}) \quad (3.10)$$

ou seja juntando as equações (3.9) e (3.10) resulta

$$N(\text{Th pares detetados}) = (N(\text{Th emitidas}).R)/72$$

e a relação entre o número de pares detetados e o número total de partículas detetadas será:

$$\frac{N(\text{Th pares detetados})}{N(\text{Th detetados})} = \frac{\frac{N(\text{Th emitido}).R}{72}}{\frac{N(\text{Th emitido}).R}{4}}$$

ou seja

$$\frac{N(\text{Th pares detetados})}{N(\text{Th detetadas})} = \frac{1}{18} \quad (3.11)$$

Para uma mistura das séries do urânio e do tório e se  $N(\text{detetados})$  for o número total de partículas alfa detetados, vem:

$$N(\text{detetado}) = N(\text{Th detetado}) + N(\text{U detetado}) \quad (3.12)$$

Da equação 3.11, temos que:

$$N(\text{Th detetado}) = 18.N(\text{pares detetados}) \quad (3.13)$$

donde temos

$$N(\text{U detetado}) = N(\text{detetado}) - 18.N(\text{pares detetados}) \quad (3.13)$$

Para calcular o número de radiação emitida em cada série, tem-se pela expressão 3.5

$$N(\text{Th detetado}) = \frac{N(\text{Th emitido}) \cdot R_{\text{Th}}}{4}$$

ou seja  $N(\text{Th emitido}) = 4.N(\text{Th detetado})/R_{\text{Th}}$

Portanto, vem:

$$N(\text{Th emitido}) = 72.N(\text{pares detetados})/R_{\text{Th}} \quad (3.14)$$

Como a cada desintegração do  $\text{Th}^{232}$  corresponde a emissão de seis partículas alfa, tem-se:

$$N = \frac{N(\text{Th emitidas})}{6} = \frac{72.N(\text{pares detetados})}{6 \cdot R_{\text{Th}}}$$

$$\therefore N = 12.N(\text{pares detetados})/R_{\text{Th}} \quad (3.15)$$

onde N é o número de desintegrações de  $\text{Th}^{232}$  por unidade de área e de tempo.

Para determinar o teor de urânio 238, tem-se pela equação 3.5:

$$N(\text{U detetado}) = N(\text{U emitido}) \cdot R_{\text{U}}/4$$

ou seja

$$N(\text{U emitido}) = \frac{4 \cdot (N(\text{detetados}) - 18N(\text{pares detetados}))}{R_U}$$

Considerando que a cada desintegração de urânio 238 corresponde a emissão de 8 partículas alfa, vem:

$$N = \frac{4(N(\text{detetados}) - 18N(\text{pares detetados}))}{8 \cdot R_U}$$

$$\therefore N = \frac{N(\text{detetados}) - 18N(\text{pares detetados})}{2 \cdot R_U} \quad (3.16)$$

onde N é o número de desintegrações de  $U^{238}$  na unidade de área e de tempo.

O alcance da radiação depende do número atômico Z do material bem como da sua densidade  $\rho$  (30). Nestas condições, nos casos das séries radioativas em equilíbrio secular, pode-se utilizar os seguintes valores médios para o alcance das radiações (31) expressos em unidades de micron:

$$\text{para toda série do urânio} \quad R_U = \frac{12,5 \cdot Z^{2/3}}{\rho} \quad (3.17)$$

$$\text{para toda série do tório} \quad R_{Th} = \frac{15,2 \cdot Z^{2/3}}{\rho} \quad (3.18)$$

Assim, se 100 gramas de solo for espalhada uniformemente sobre o sistema de detecção alfa, a uma espessura igual ao alcance da radiação alfa, pode-se construir a calibração do sistema de detecção alfa. Esta calibração encontra-se na ta-



bela III-7 obtida a partir das tabelas III-3 e III-6.

TABELA III-7

## Calibração do sistema de detecção alfa

elemento	alfa emitida minuto. g <sub>solo</sub>	taxa de dose anual devido a série do tório e do urânio existente em 100 g. de solo de composição média.		
		alfa	beta	gama
Th <sup>232</sup>	2,426	730,74	18,48	38,70
U <sup>238</sup>	1,471	531,02	22,80	7,80

Como foi visto no início deste parágrafo, a emissão dos "pares de alfa" é produzida pelo decaimento do Ra<sup>220</sup> em Po<sup>216</sup> e deste em Pb<sup>212</sup>. Pode, entretanto, acontecer a coincidência das radiações alfa que são emitidas pelos outros núclídeos das séries, que dão origem aos "pares espúrios". Isto significa que é necessário corrigir o número de "pares de alfa" e com a finalidade de se estimar o número de "pares espúrios", utiliza-se a distribuição de Poisson.

Para um grande número de partículas alfa, a probabilidade de N partículas alfa serem emitidas em um dado intervalo de tempo é:

$$P = \frac{\Delta X^N}{N!} \exp(-\Delta X)$$

onde  $\Delta X$  é o número médio de partículas alfa emitidas no in-

intervalo de tempo  $\Delta t$ .

$N$  é o número inteiro positivo (que pode variar de zero a infinito) e corresponde ao número de partículas alfa emitidas no intervalo de tempo  $\Delta t$ .

Se  $S$  é a taxa de contagem média observada, então no intervalo de tempo  $\Delta t$ , tem-se:

$$\Delta X = S \cdot \Delta t$$

Considerando arbitrariamente  $\Delta t = 0,32$  segundos aproximadamente o dobro da meia vida do  $Po^{216}$ , e  $S$  expressa em contagens/segundo, a probabilidade de haver emissão de duas partículas ( $N=2$ ) no intervalo de tempo  $\Delta t = 0,32$  segundos é:

$$\begin{aligned} P &= \frac{(S \cdot \Delta t)^2}{2!} \cdot \exp(-S \cdot \Delta t) \\ &= \frac{(S \cdot 0,32)^2}{2!} \cdot \exp(-S \cdot 0,32) \\ &= 5,12 \cdot 10^{-12} \cdot S^2 \cdot \exp(-0,32 \cdot S) \end{aligned}$$

Para  $\Delta X \ll 1$ , tem-se  $\exp(-\Delta X) \approx 1$ ; portanto:

$$P \approx 5,12 \cdot 10^{-12} \cdot S^2$$

Se  $S$  for expressa em contagens/minuto, então a probabilidade será:

$$P' = \frac{(S')^2}{2} \cdot (5,3 \cdot 10^{-3})^2 \cdot \exp(-S' \cdot 5,3 \cdot 10^{-3})$$

Se  $\Delta X \ll 1$ ,  $\exp(-\Delta X) \approx 1$  e

$$P = (S')^2 \cdot 14,04 \cdot 10^{-6}$$

Assim, se a taxa de contagem for 1 contagem/minuto, em 1000 minutos, o número de pares espúrios será:

$$\begin{aligned} n(\text{pares espúrios}) &= 10^3 \cdot P \cdot 60 / 0,32 \\ &= 10^3 \cdot 60 \cdot 14,04 \cdot 10^{-6} \cdot (1)^2 / 0,32 \end{aligned}$$

$$n(\text{pares espúrios}) = 2,63$$

onde  $n(\text{pares espúrios})$  é o número de pares espúrios.

Este cálculo permite uma correção do número de pares de alfa, mas não é totalmente exato por causa de dois fatores:

- 1) a distribuição de Poisson só é obedecida por uma parte da série;
- 2) há probabilidade de coincidência de ordem superior a dois que não foram considerados.

### III-6 DETERMINAÇÃO DIRETA DA TAXA DE DOSE

Em princípio, a taxa de dose pode ser determinada a través de sistemas eletrônicos de baixo ruído acoplados aos contadores GM<sup>(27,32)</sup>, câmaras de ionização<sup>(27)</sup>, contadores proporcionais e cintiladores portáteis<sup>(27,28,33)</sup>. Entretanto,

quando a taxa de dose se torna da ordem de frações de mrad/h, é necessário utilizar dosímetros que possam ficar expostos por um período de tempo suficientemente longo para que a dose alcance um valor tal que a medida seja significativa. Além disso, como os dosímetros ficarão expostos às condições reais locais, na sua escolha devem ser levados em conta vários fatores ambientais, tais como a atividade dos radionuclídeos no local da peça a ser analisada e tipos de radiações envolvidas.

Além desses fatores, os dosímetros devem satisfazer as condições intrínsecas de um bom dosímetro, das quais se resalta:

- 1) a independência da resposta com a direção de incidência e energia da radiação;
- 2) a boa reprodutibilidade;
- 3) o desvanecimento desprezível no tempo ("fading")
- 4) a boa sensibilidade.

Tendo em vista os fatores acima e os dosímetros atualmente existentes no comércio, alguns dos que poderiam ser utilizados na dosimetria ambiente seriam:

- a) o filme dosimétrico
- b) o radiofotoluminescente
- c) o termoluminescente

### III-6.1 FILME DOSIMÉTRICO

Os filmes apresentam erro da ordem de 20% para 100 mR e maiores para exposições menores <sup>(6)</sup>. Considerando que a

dose anual da radiação gama dos radionuclídeos naturais do solo de composição média é dessa ordem de grandeza, o uso do filme é possível se for utilizado juntamente com um intensificador de imagem.

Todavia, os filmes apresentam alguns problemas que os tornam pouco indicados na determinação da taxa de dose do solo, tais como grande dependência com a energia da radiação e o desvanecimento da imagem latente além da influência da temperatura e da umidade do meio ambiente<sup>(6,34)</sup>.

### III.6.2 DOSÍMETRO RADIOFOTOLUMINESCENTE

Os dosímetros radiofotoluminescentes apresentam pequeno desvanecimento, da ordem de 1% em 90 dias para vidros da Toshiba<sup>(6)</sup> e sua resposta é linear com a exposição, de 10 mR a 3000 R para vidros da Toshiba<sup>(6,35)</sup> mas, são fortemente dependentes da energia da radiação e apresentam sensibilidade relativamente baixa (para 20 mR, o erro é da ordem de 100%<sup>(6)</sup>) além de apresentarem uma série de inconveniências, por exemplo, a necessidade de um tratamento complicadíssimo para recondição.

### III.6.3 DOSÍMETROS TERMOLUMINESCENTES

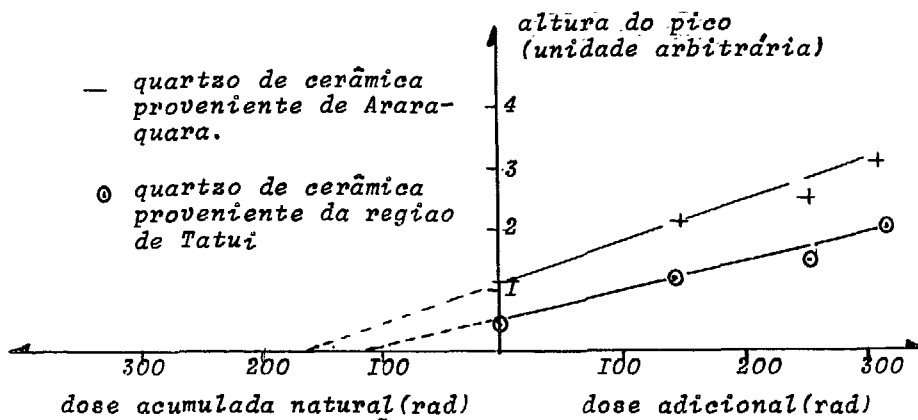
Os dosímetros termoluminescentes apresentam diversas qualidades que os tornam atraentes para a dosimetria ambiente<sup>(27,36,37)</sup> tais como:

- 1) alta reprodutibilidade para baixas exposições;
- 2) pequena dependência com a energia da radiação;
- 3) resposta termoluminescente linear com a exposição;
- 4) pequeno desvanecimento;
- 5) independência da direção de incidência da radiação;
- 6) sensibilidade a vários tipos de radiações tais como alfa, beta, gama e prótons;
- 7) pequeno tamanho, o que permite considerá-los um dosímetro quase puntiforme.

Em virtude dessas qualidades, neste trabalho utilizaram-se os dosímetros termoluminescentes, apesar de terem sido feitos testes preliminares com os outros dois anteriormente mencionados. Os dosímetros termoluminescentes foram utilizados da seguinte forma: foram enterrados em amostras de solos dos sítios arqueológicos e, também no próprio sítio durante diferentes períodos e a sua dose acumulada foi determinada através de curva de calibração, isto é, a curva de resposta termoluminescente à dose.

### III-7 DETERMINAÇÃO DA DOSE ACUMULADA NO QUARTZO

A dose acumulada no quartzo foi determinada da seguinte forma: alíquotas de quartzo foram irradiadas com diferentes exposições, a leitura de suas termoluminescência permitiu a construção da seguinte curva:



Na figura III-4,  $N$  corresponde a termoluminescência devido a dose acumulada natural;  $N + \gamma_i$  corresponde a termoluminescência devido à soma da dose acumulada natural à dose adicional  $\gamma_i$  e D.A. corresponde a dose acumulada natural.

Esse modo de determinar a dose acumulada natural é vantajoso pois, permite:

- 1) diminuir o erro que se comete na determinação da dose acumulada pelo quartzo quando se utiliza uma única curva de calibração para diferentes tipos de quartzo;
- 2) verificar se há crescimento proporcional da termoluminescência com a dose: isto é feito da seguinte forma: se  $N$  está na região linear, desde que os  $\gamma_i$  não sejam muito elevados, os pontos da figura III-4 devem aparecer alinhados e a interseção do prolongamento da reta com o eixo horizontal fornece a D.A.; se  $N$  já estiver na região supralinear, os pontos devido às doses adicionais  $\gamma_i$  não estarão alinhados. Neste caso, é necessário construir a curva de resposta termoluminescência

versus dose absorvida do quartzo e daí deduzir o valor da dose acumulada. No caso do presente trabalho, as amostras de quartzo utilizadas apresentaram N na região linear.



## CAPÍTULO IV

### EQUIPAMENTOS, MATERIAIS E MÉTODOS

Neste capítulo descrevem-se inicialmente os equipamentos utilizados no presente trabalho a saber:

- a) sistema de leitura termoluminescente
- b) sistema de detecção alfa
- c) separador magnético

A seguir, tecem-se considerações a respeito dos materiais utilizados na determinação da:

- a) dose acumulada no quartzo
- b) taxa de dose

Encerra-se o capítulo considerando-se os métodos utilizados na preparação do quartzo para determinar a dose acumulada e dos dosímetros termoluminescentes para determinar a taxa de dose.

#### IV.1 SISTEMA DE LEITURA TERMOLUMINESCENTE

Um sistema de leitura termoluminescente consta es-

sencialmente de uma prancheta para o aquecimento do fósforo, uma válvula fotomultiplicadora, um sistema de alta tensão para alimentar a válvula fotomultiplicadora, um eletrômetro e um registrador. O diagrama de bloco do sistema encontra-se na figura IV-1

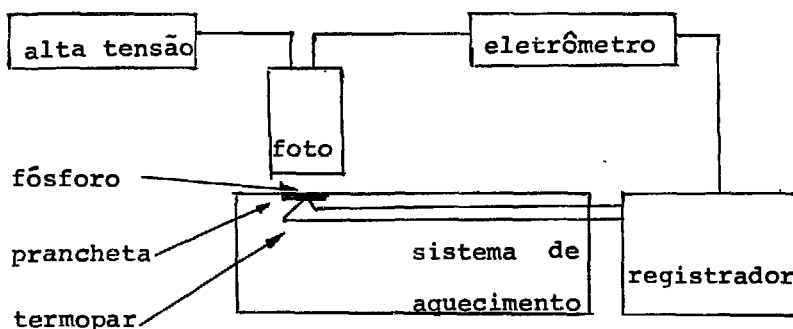


Figura IV-1 Diagrama de bloco do sistema de leitura termoluminescente

O sistema de leitura termoluminescente utilizado neste trabalho foi o conjunto analisador termoluminescente da HARSHAW, modelo 2000, acoplado a um registrador da VARIAN, modelo G-2500, que permitiu o registro da curva de emissão.

Este conjunto analisador termoluminescente que se vê na figura IV-2 pode ser dividido em duas unidades básicas:

- a) conjunto de detecção termoluminescente, modelo 2000 A
- b) picoamperímetro integrador automático, modelo 2000B



Figura IV-2

Conjunto analisador termoluminescente HARSHAW, modelo 2000, acoplado a um registrador VARIAN, modelo G-2500.

IV.1.1 DETETOR TERMOLUMINESCENTE DA HARSHAW, MODELO  
2000A

Este conjunto permite o uso tanto de dosímetro em pó como na forma de pastilhas. Os dosímetros são colocados sobre uma prancheta que pode ser de monel, de prata ou de uma liga a base de platina com diferentes formas e dimensões. Isto permite uma boa acomodação bem como um aquecimento uniforme dos dosímetros. A prancheta utilizada no presente trabalho com dimensões 6x6x1 mm, era de uma liga a base de platina altamente resistente à oxidação, mesmo quando aquecida a temperaturas superiores a 400<sup>0</sup>C e de baixa incandescência.

Nesse detetor, a prancheta acha-se ligada a um sistema de aquecimento e a um termopar de ferro constantana. A tensão acusada pelo termopar é amplificada e comparada com um programador de temperatura. Esse sistema de aquecimento permite obter razões de aquecimentos lineares para a temperatura sentida pelo termopar e portanto, aproximadamente lineares para o fósforo.

A emissão luminosa devida ao aquecimento do dosímetro colocado na prancheta é coletada por uma válvula fotomultiplicadora através de um sistema de filtros, lentes e espelhos. Os filtros tem, entre outras, a finalidade de reduzir a luminescência de fundo e selecionar a amplitude do espectro de emissão.

Na figura IV-3 vê-se o espectro de transmissão do filtro medido com o espectrofotômetro da ZEISS, modelo DMR21 WZ que registra diretamente a densidade ótica da amostra em

função do número de onda em um intervalo de  $4.10^3 \text{ cm}^{-1}$  a  $54.10^3 \text{ cm}^{-1}$  e com um tempo de resposta para a caneta do registrador de 1 segundo.

Para efeito de calibração do conjunto analisador, esta unidade possui uma fonte padrão de luz que emite fluorescência constante e possibilita a calibração do ganho do aparelho, além de possíveis correções para diferentes valores da alta tensão na fotomultiplicadora.

O desenho esquemático desta unidade encontra-se na figura IV-4.

#### IV.1.2 PICOAMPERÍMETRO INTEGRADOR AUTOMÁTICO MODELO 2000 B

O picoamperímetro integrador automático modelo 2000 B é constituído de um picoamperímetro, um contador digital com intervalo de  $10^{-10}$  a  $10^{-12}$  C, uma fonte de tensão para a fotomultiplicadora com tensão máxima de 1,5 kV e um programador de tempo, com escalas de tempo de 10,30,60,100 e cosegundos, que controla o tempo de aquecimento de cada ciclo de leitura.

O intervalo de corrente do picoamperímetro pode ser estabelecido automática ou manualmente dentro do intervalo de  $10^{-13}$  a  $10^{-6}$  ampères. No circuito do picoamperímetro há possibilidade de injetar uma corrente de supressão que permite diminuir a corrente de fundo ou qualquer sinal indesejável e, em consequência, o erro na leitura.

Curva de transmissão do filtro analisador termoluminescente Harshaw

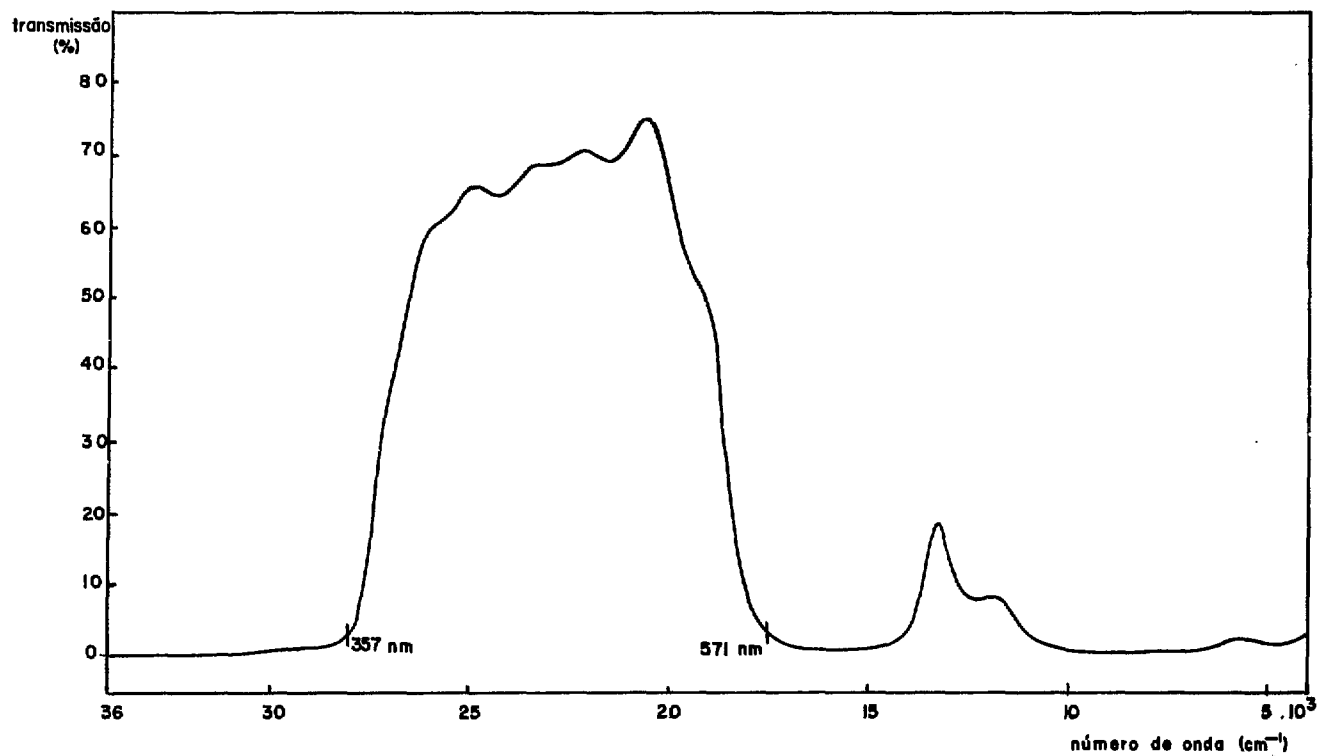


Figura IV-3

Espectro de transmissão do filtro do detetor termoluminescente da HARSHAW, modelo 2000A, medido com o espectrofotometro da ZEISS, modelo DMR21.

## SECÇÃO LATERAL DO DETETOR TERMOLUMINESCENTE

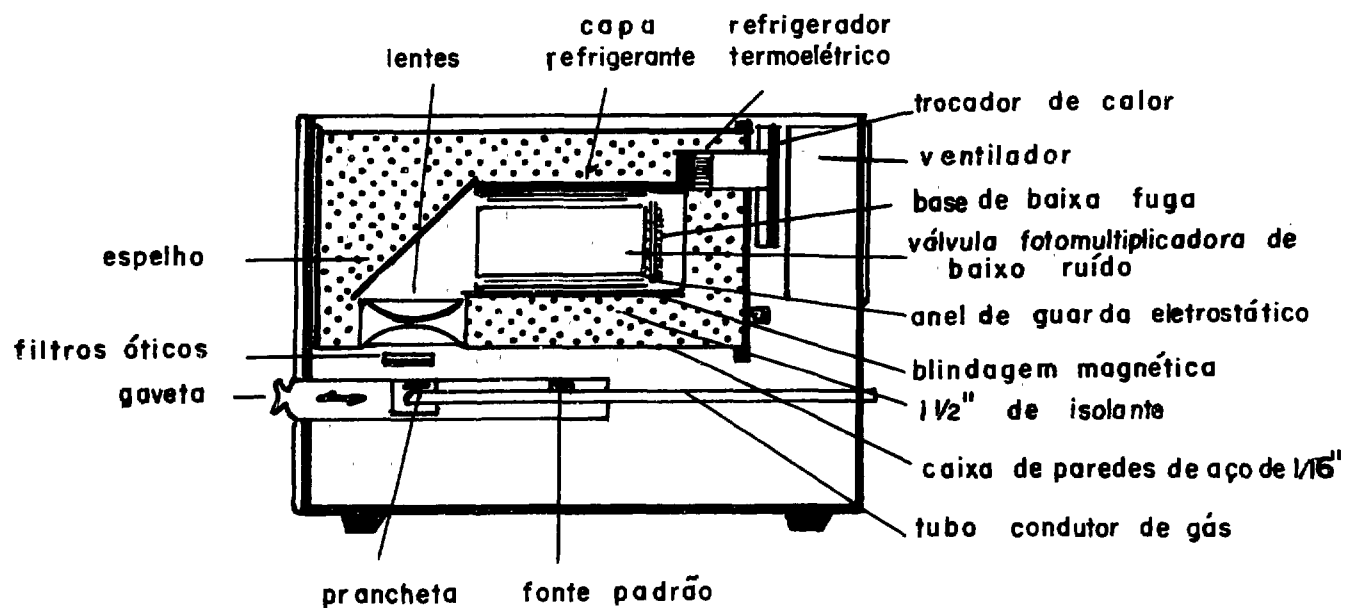


Figura IV-4 Desenho esquemático do detetor termoluminescente HARSHAW, modelo 2000A

### IV.1.3 REGISTRADOR MODELO G 2500 DA VARIAN

Acoplado às unidades 2000 A e 2000 B utilizou-se um registrador com a finalidade de se obter a curva de emissão.

O registrador permite o registro da curva de emissão com velocidades de  $10^{-2}$  a  $10^4$  IN/MIN ou de 1 a  $10^3$  IN/HR com fator de amplificação de 1 mV a 1 V, havendo também um sistema de calibração externa que permite outros valores para a escala completa ou fator de amplificação.

### IV.2 SISTEMA DE DETECÇÃO ALFA

Este sistema foi construído com a finalidade de se determinar os teores de urânio e tório existentes no solo ena peça arqueológica através do método da contagem da radiação alfa emitida pelos nuclídeos das duas séries já descrito no capítulo III. Na figura IV-5 apresenta-se o diagrama de bloco do sistema utilizado.

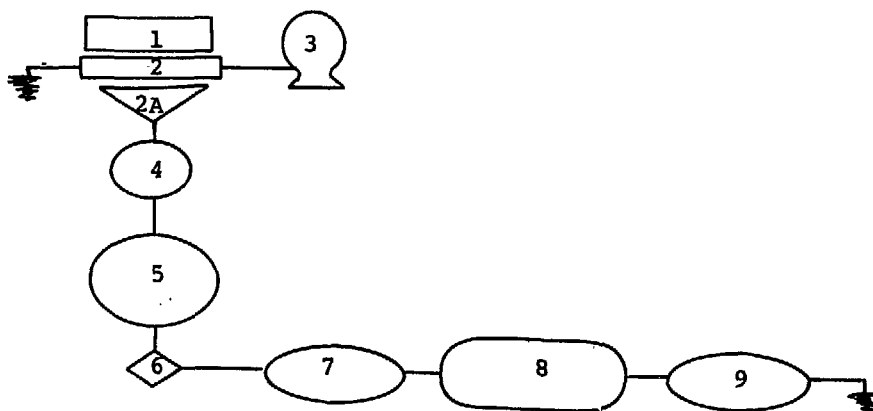


Figura IV-5 Diagrama de bloco do sistema de detecção alfa



No diagrama de bloco apresentado na figura IV-5, os números tem os seguintes significados:

- 1) detetor de sulfeto de zinco
- 2) válvula fotomultiplicadora da RCA
- 2A) base da ORTEC, modelo 266 para a válvula fotomultiplicadora
- 3) fonte de alta tensão da ORTEC, modelo 456 com intervalo de tensão de 0 a 3 kV.
- 4) pré-amplificador da ORTEC, modelo 113
- 5) amplificador da ORTEC, modelo 485
- 6) analisador monocanal da ORTEC, modelo 406 A.
- 7) escalímetro eletrônico acoplado a um escalímetro mecânico da ORTEC, modelo 484.
- 8) circuito de coincidência
- 9) escalímetro eletrônico da HEWLITT PACKARD, modelo 5216 A.

Além dessas unidades básicas, como medidas de segurança, utilizaram-se os seguintes acessórios:

- 1) uma blindagem do detetor e da válvula fotomultiplicadora contra luz e campos magnéticos
- 2) um divisor de tensão que permite uma tensão máxima de 12 volts quando a válvula fotomultiplicadora é exposta a luz ambiente com a fonte de alta tensão ligada

A contagem da radiação alfa emitida pelo solo ou cerâmica é feita da seguinte forma: o material é depositado em camada uniforme sobre o detetor. A fração do número total de partículas alfa emitida e detetada é registrada no escalímetro 7 enquanto a fração de "pares de alfa" detetados o é no escalímetro

tro 9 após passar pelo circuito de coincidência. Este é basicamente um circuito monoestável com tempo de operação de 0,32 segundos, que funciona da seguinte maneira: quando chega um pulso ao circuito, este entra em operação durante o tempo acima mencionado; se o pulso seguinte vier dentro deste intervalo de tempo será registrado, caso contrário servirá para disparar o circuito e não será contado. Assim, a cada contagem registrada no escalímetro 9 corresponde um "par de alfa" em um intervalo de tempo igual ou inferior a 0,32 segundos.

#### IV.3 SEPARADOR MAGNÉTICO

O separador magnético FRANTZ ISODYNAMIC, modelo L-1 foi utilizado neste trabalho numa das etapas da separação do quartzo, material que serviu como dosímetro para determinar a dose acumulada, das demais componentes da cerâmica, da urna e do solo.

Basicamente, o aparelho consiste de um eletroímã tendo os dois polos separados por uma canaleta de material não magnético por onde passam os materiais a serem separados. Na figura IV-6 pode-se ver o separador magnético.

O conjunto composto pelas várias unidades permite a separação da seguinte forma: a amostra é constituída de partículas que na canaleta estão sob a ação dos campos gravitacional e magnético. Assim, sobre cada partícula estão agindo componentes opostas da força gravitacional ( $F'_g$ ) e da força magnética<sup>(44)</sup> ( $F'_m$ ). Calculando essas forças, obtém-se:

$$F_m = \chi \cdot m \cdot \frac{dH^2}{dx} \text{ dinas} \quad (4.1)$$

onde  $\chi$  é a susceptibilidade específica do material em e.m.u.

$m$  é a massa do grão em grama

$H$  é a intensidade do campo magnético

$x$  é a distância dos polos à canaleta

$$F'_g = m \cdot g \cdot \text{sen } \theta \text{ dinas} \quad (4.2)$$

onde  $m$  é a massa do grão em grama

$g$  é a intensidade do campo gravitacional

Nestas condições, se  $F'_g > F_m$ , o grão é conduzido para o lado direito (no sentido do movimento do grão) e, se  $F_m$  for maior que  $F'_g$ , o grão será conduzido para o lado esquerdo.

Na condição de equilíbrio, tem-se:

$$F'_g = F_m \quad \cdot \quad \cdot \quad m \cdot g \cdot \text{sen } \theta = \chi \cdot m \cdot \frac{dH^2}{dx}$$

ou seja

$$\frac{\text{sen } \theta}{\chi} = \frac{1}{g} \cdot \frac{dH^2}{dx} \quad (4.3)$$

Como se pode ver pela equação acima, a separação é determinada unicamente pela susceptibilidade específica do ma

terial sem ser necessário conhecer a densidade e a massa da partícula. Por outro lado, ve-se que a inclinação correspondente ao ângulo  $\phi$  não participa da separação mas simplesmente na taxa de queda dos grãos nos recipientes.

#### IV.4 MATERIAIS

##### IV.4.1 MATERIAIS UTILIZADOS NA DETERMINAÇÃO DA DOSE ACUMULADA.

Como foi visto no capítulo I, há vários tipos de materiais nos sítios arqueológicos. Em particular, são interessantes para a datação as cerâmicas e as urnas. Em determinados sítios, mesmo naqueles onde não há cerâmicas ou urnas tem sido encontrados restos de solos queimados, prováveis vestígios de antigas fogueiras. Esses solos queimados tem sido encontrados em diferentes profundidades, como por exemplo no sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de São Paulo e são também bastante interessante para datação.

Das cerâmicas, urnas e solos queimados, pode-se extrair o quartzo que servirá como dosímetro na determinação da dose acumulada pela peça durante o período que se pretende medir.

O quartzo assim obtido, entretanto, só servirá para datação por termoluminescência se:

- 1) o solo queimado, a cerâmica ou a urna tiver alcançado uma temperatura tal que tenha sido eliminada a dose acumulada pelo quartzo durante o período anterior ao que se

pretende medir.

2) o grão de quartzo apresentar uma dimensão igual ou superior ao alcance das radiações alfa, beta, gama e elétrons produzidos pela radiação gama. Esta é uma condição indispensável para a medida da exposição ou da dose.

Para verificar as condições em que os dois itens acima são satisfeitos, desenvolvem-se a seguir, cálculos da temperatura a ser alcançado pelo grão e da dimensão dos grãos de quartzo.

#### IV.4.2 TEMPERATURA ALCANÇADA PELA CERÂMICA, URNA E SOLO QUEIMADO

A urna e a cerâmica atingem durante a sua confecção temperaturas superiores a  $600^{\circ}\text{C}$  (15,43), quando há então a eliminação da dose acumulada no período anterior ao da sua fabricação.

No caso do solo que fica sob uma fogueira, há um gradiente de temperatura que depende de parâmetros como a umidade e a densidade, por exemplo. Para estimar a temperatura a diversas profundidades, considere-se que a transferência de calor é feita por condução térmica. Neste caso é válida a seguinte expressão:

$$Q = \lambda \cdot \frac{T_2 - T_1}{L} \cdot S \cdot t \quad \text{para } T_2 > T_1$$

onde  $Q$  é a quantidade de calor (kcal)

$\lambda$  é a condutividade térmica (kcal/m.h. $^{\circ}\text{C}$ )

$T_2, T_1$  são as temperaturas das faces quente e fria ,  
respectivamente ( $^{\circ}\text{C}$ )

L é a distância entre as faces quente e fria (m)

S é a área do solo ( $\text{m}^2$ )

t é o tempo durante o qual se processa o fenômeno  
da condução térmica (h)

Considere-se, para efeito de estimativa, os seguintes tipos de solos:

- 1) solo argiloso (série Iracema)
- 2) solo arenoso (série Luiz de Queiroz)
- 3) solo barrento (série Quebra Dente)

cujas composições física e química encontram-se no quadro IV-1

#### QUADRO IV-1

Composição percentual de 3 tipos de  
solos: argiloso, arenoso e barrento

solo	composição física				composição química		
	areia	limo	argila	m. org.	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{SiO}_2$
Iracema	21,64	11,0	67,0	2,26	20,96	24,4	37,8
Luiz de Queiroz	33,9	27,5	38,4	1,30	19,0	14,0	53,5
Quebra Dente	79,0	19,1	4,9	0,98	3,04	7,5	85,2

Como se pode ver, a composição é bastante variável  
em consequência, a condutibilidade térmica é diferente para

os diversos tipos de solo. Segundo Decico (38), a variação da condutividade térmica em função da umidade e da densidade é:

## QUADRO IV-2

Condutividade térmica de três tipos de solos em função da densidade e da umidade

solo	densidade	umidade	cond. térmica
série	(g/cm <sup>3</sup> )	(%)	(kcal/m.h.°C)
Iracema	max. 1,22	35,0	1,355
	min. 0,95	8,5	0,117
Luiz de Queiroz	max. 1,35	30,0	1,19
	min. 0,94	6,5	0,12
Quebra Dente	max. 1,44	14	3,55
	min. 1,12	4	0,73

Com os valores da condutividade térmica do quadro IV 2 e com os seguintes valores:

$$S = 1 \text{ m}^2 \text{ (arbitrária)}$$

$$t = 1 \text{ h (arbitrária)}$$

$$T_2 = 700^\circ\text{C (temperatura da queima da madeira)}^*$$

$$Q = 2,4 \cdot 10^3 \text{ (kcal/kg de madeira). (41)}$$

estimam-se os valores da temperatura a diferentes profundidades para os diferentes solos.

\* comunicação particular do prof. Dr. Toshiyuki Nakajima.

TABELA IV-1

Temperatura de diferentes tipos de solos a diferentes profundidades.

solo série	profundidade		
	1 cm	10 cm	20 cm
Iracema	682°C	524°C	348°C
Luiz de Queiroz	680°C	498°C	297°C
Quebra Dente	693°C	632°C	565°C

Pela tabela IV-1, pode-se ver que a camada útil para a datação pelo método da inclusão, usando o quartzo, é de 10 cm pois a região útil da curva de emissão ("glow curve") está ao redor de 300°C.

#### IV.4.3 ALCANCE DAS RADIAÇÕES NO SiO<sub>2</sub>

A energia dos elétrons secundários produzidos pela radiação gama dos radionuclídeos naturais do solo é menor que a média das energias máximas da radiação beta. Johns et al demonstraram que para fótons com energia de 1 Mev, os elétrons tem energia de 0,796 Mev, enquanto que para fótons de 1,2 Mev, a energia dos elétrons é de 0,989 Mev<sup>(39)</sup>. Então calcular-se-á apenas o alcance das radiações alfa e beta.



IV.4.3.1 CÁLCULO DO ALCANCE DA RADIAÇÃO ALFA NO  
SiO<sub>2</sub>

O alcance da radiação alfa em um material de massa atômica A é dado por

$$R = \frac{0,56 \cdot R_A \cdot A^{1/3}}{\rho}$$

onde R é o alcance da radiação alfa no ar e  $\rho$  a densidade do material de massa atômica A.

Segundo Price<sup>(40)</sup>, para radiação alfa de 6 Mev, o valor do alcance R é igual a 1,3 cm. Portanto,  $R_{Si} \approx 2,205 \text{ mg/cm}^2$  e  $R_{O_2} = 1,870 \text{ mg/cm}^2$ . Com esses valores, pode-se calcular o valor do alcance da radiação alfa no SiO<sub>2</sub>, valor este aproximadamente igual a 1,970 mg/cm<sup>2</sup>. Sendo a densidade do SiO<sub>2</sub> aproximadamente igual a 2,5 g/cm<sup>3</sup>, o alcance da radiação alfa será aproximadamente igual a 7,8 micra no SiO<sub>2</sub>.

IV.4.3.2 CÁLCULO DO ALCANCE DA RADIAÇÃO BETA NO SiO<sub>2</sub>

A radiação beta, sendo cargas elétricas em movimento, produz durante sua desaceleração radiação eletromagnética ("bremsstrahlung"). A relação entre a energia perdida por radiação eletromagnética e aquela perdida por colisão é dada por<sup>(39)</sup>

$$\frac{(dE/dx)_b}{(dE/dx)_c} = \frac{E \cdot Z}{1600 \text{ mc}^2}$$

onde  $E$  é a energia da radiação beta  
 $Z$  é o número atômico médio do meio absorvedor  
 $m$  é a massa do elétron  
 $c$  é a velocidade da luz  
 $(dE/dx)_b$  é a energia perdida por radiação eletromagnética  
 $(dE/dx)_c$  é a energia perdida por colisão

Considerando a massa do elétron e a velocidade da luz, tem-se  $mc^2 = 0,51$  Mev. A energia máxima da radiação beta presente no solo é 0,94 Mev (vide tabela III-4) e o número atômico efetivo do meio absorvedor  $Z$  é 10; portanto, da equação acima pode-se ver que a fração de energia perdida por radiação é de 1,3%.

Em consequência, o alcance da radiação beta será independente do número atômico do absorvedor, isto é,

$$R_{Z_1} (\text{g/cm}^2) = R_{Z_2} (\text{g/cm}^2)$$

Nestas condições, o alcance da radiação beta emitida pelo solo será  $400 \text{ mg/cm}^2$  no  $\text{SiO}_2$  (30), ou seja,  $160 \cdot 10^{-3}$  centímetros tomando-se a densidade do  $\text{SiO}_2$  como sendo aproximadamente  $2,5 \text{ g/cm}^3$  (26).

#### IV.4.4 MATERIAIS UTILIZADOS NA DETERMINAÇÃO DA TAXA DE DOSE

Os materiais utilizados na determinação da taxa de

dose foram:

- a) a peça na qual se encontrava o quartzo;
- b) o solo onde a peça se encontrava enterrada.

A determinação da taxa de dose utilizando os materiais acima foi feita:

a) indiretamente, utilizando o sistema de detecção da radiação alfa, que permitiu determinar os teores de urânio e tório e o fotometro de chama, que permitiu determinar o teor de potássio.

b) diretamente, através de dosímetros termoluminescentes  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e TLD-100 ( $\text{LiF}:\text{Mg}$ ), os quais foram enterrados em amostras de solo e no próprio sítio arqueológico.

#### IV.5 MÉTODOS

##### IV.5.1 MÉTODO DE PREPARAÇÃO DAS AMOSTRAS DE QUARTZO PARA DETERMINAR A DOSE ACUMULADA PELA PEÇA ARQUEOLÓGICA

Em geral, a peça arqueológica achava-se impregnada de materiais provenientes do meio ambiente em que se encontrava .

Com a finalidade de se eliminar tais resíduos, as peças foram lavadas com água e em seguida imersas em água por período variável de 4 a 10 dias. Ao final deste intervalo de tempo, retiram-se delas camadas superficiais de aproximadamente 1 milímetro a fim de se eliminar a influência das radiações alfa e beta do solo na leitura da dose acumulada.

Como o quartzo apresenta dureza 7 na escala de Mohr

e a cerâmica, em geral é quebradiça e pouco resistente à compressão<sup>(17)</sup>, fragmenta-se a peça, sempre que é possível, de modo a não aplicar uma compressão diretamente sobre os grãos de quartzo.

Após o processo de fragmentação, faz-se a granulometria utilizando peneira da GRANUTEST com malhas de valores nominais 60, 80 e 200 MESH TYLER, obtendo-se três amostras com as seguintes granulações:

fração a. granulação entre 177 e 250 micra

fração b. granulação entre 74 e 177 micra

fração c. granulação inferior a 74 micra

A fração b foi destinada à extração do quartzo que serviu para determinar a dose acumulada. A fração c foi utilizada para determinar os teores de Urânio, Tório e Potássio e a fração a foi guardada.

A fração b foi dividida em duas partes A e B as quais foram colocadas em vidros escuros a fim de diminuir a possível influência da luz. A parte A foi misturada com ácido clorídrico concentrado e frio e a parte B, com água régia. Essas soluções químicas limpam a superfície do quartzo, facilitando a separação magnética e a leitura termoluminescente. Após um período de 2 a 4 dias, as amostras foram lavadas com água e secas à temperatura ambiente. A separação do quartzo desta amostra seca foi feita com o auxílio do separador magnético e uma solução de bromoformio de densidade  $2,00 \text{ g/cm}^3$  ( a densidade do quartzo é  $2,635 \text{ g/cm}^3$  ).

O quartzo assim obtido foi examinado qualitativamente em um microscópio; a seguir separou-se a amostra em duas

porções  $A_1$  e  $B_1$ . A porção  $A_1$  foi destinada às irradiações adicionais com radiação gama e, a porção  $B_1$  à leitura da dose acumulada natural.

#### IV.5.2 MÉTODO DE IRRADIAÇÃO

As irradiações para obter as curvas de calibração foram feitas utilizando-se fontes de:

a) césio 137\*

Este elemento tem meia vida de  $30 \pm 3$  anos e emite radiação gama com energia de 0,66 Mev (85%) (23).

A fonte de césio 137 foi calibrada com o condenser R meter, modelo 553 da VICTOREEN cuja precisão é de 5% de acordo com a National Bureau of Standards, dando  $0,68 \pm 0,03$  R/min a 50 centímetros de distância no mês de setembro de 1968<sup>(6)</sup>.

b) cobalto 60\*\*

O cobalto 60 apresenta meia vida de  $5,26 \pm 0,05$  anos e emite duas radiações gama, de energia 1,173 Mev (100%) e 1,332 Mev (100%) em cada desintegração.

Esta fonte foi calibrada com 10% de erro em 21 de janeiro de 1958 pela TRACER LAB. INC., dando uma atividade de 75 mCi.

---

\* esta fonte pertence ao Departamento de Biologia do Instituto de Biociências da USP ao qual agradecemos pela permissão de utilizá-la.

\*\* esta fonte pertence a Divisão de Proteção Radiológica do IEA, a qual agradecemos pela permissão de utilizá-la.

As fontes acima mencionadas foram utilizadas na irradiação, com diferentes exposições, de aliquotas de uma mesma amostra colocadas em cápsulas de polietileno, cilíndricas com paredes de espessura de 1 mm., diâmetro interno de 3 mm e 14 mm de comprimento. Na irradiação do quartzo, procurou-se colocar, também, dosímetros TLD-100 com a finalidade de se efetuar uma dosimetria relativa. Os erros devidos à posição e ao tempo de exposição foram de 5%.

IV.5.3 MÉTODOS DE PREPARAÇÃO DOS DOSÍMETROS TERMOLUMINESCENTES PARA DETERMINAÇÃO DIRETA DA TAXA DE DOSE.

A preparação dos fósforos termoluminescentes, utilizados na determinação da taxa de dose proveniente do solo, obedeceu às seguintes etapas:

1) tratamento térmico

1.a)  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

Recozeu-se o fósforo a  $400^\circ\text{C}$  durante 1 hora e em seguida resfriou-se-o rapidamente à temperatura ambiente<sup>(43)</sup>.

1.b) TLD-100

Recozeu-se o fósforo a  $400^\circ\text{C}$  durante 1 hora e em seguida resfriou-se-o rapidamente à temperatura ambiente; a seguir recozeu-se-o a  $80^\circ\text{C}$  durante 24 horas<sup>(13)</sup>.

2) encapsulamento

Os fósforos foram embalados nas cápsulas de polietileno já descritas no paragrafo IV.5.2 e estas foram fechadas a quente em bolsas de plástico de 4 x 3 centímetros. Este proce-

dimento teve a finalidade de evitar, entre outras, a umidade do solo, a contaminação do fósforo e os possíveis danos mecânicos.

#### IV.5.4 MÉTODO DE PREPARAÇÃO DO DETETOR ZnS PARA O SISTEMA DETETOR ALFA

O detetor de ZnS foi preparado no laboratório, pois, na ocasião não havia no mercado detetores deste tipo com as dimensões da fotomultiplicadora (aproximadamente 12 cm de diâmetro) do sistema detetor alfa utilizado no presente trabalho.

Também, é importante que a superfície do detetor possa ser limpa após cada análise, pois evita-se, assim, a necessidade de se usar um detetor para cada análise.

O método de preparação consiste basicamente no processo de decantação do ZnS sobre uma placa de "plexiglass" mergulhada em acetato de amila. Isto permite obter camada de ZnS de espessura uniforme e homogeneamente distribuída sobre a superfície. Após a deposição do ZnS sobre a superfície, faz-se uma drenagem lenta do líquido numa taxa de 50 gotas/min.

Terminada esta etapa, a placa é seca à temperatura ambiente. Como o acetato de amila dissolve lentamente o "plexiglass", a placa obtida desta forma apresenta ZnS incorporado.

Prepararam-se sete placas com densidades superficiais diferentes como se vê na tabela IV-3.

A maior eficiência na conversão da energia da radiação alfa em pulsos luminosos é conseguida quando a energia da partícula alfa é absorvida pelo ZnS. As placas que apresentaram boa eficiência, quando testadas com uma fonte de amerí-

cio 241 (energia da partícula alfa emitida: 5,433 Mev e meia-vida do elemento: 458 anos) foram as placas de números 2, 3 e 7.

TABELA IV-3

Placas de ZnS preparadas pelo método da decantação\*

placa nº	densidade (mq/cm <sup>2</sup> )
1	7,894
2	15,041
3	15,068
4	10,005
5	10,470
6	11,314
7	13,759

\* agradecemos ao Sr. Luiz pela confecção do sistema de decantação.





Figura IV-6

Separador magnético FRANTZ ISODYNAMIC, modelo L-1  
utilizado em uma das etapas de separação do quartzo da peça.



Figura IV-5A

Sistema de detecção alfa utilizada na determinação dos teores de urânio e de tório na peça arqueológica e no solo no qual a peça se encontrava enterrada

## CAPÍTULO V

### RESULTADOS

Apresentam-se neste capítulo os resultados dos seguintes estudos:

1) estudo das propriedades termoluminescentes do quartzo fundamentais para o processo de datação.

2) estudo das taxas de doses de sítios arqueológicos utilizando dosímetros termoluminescentes

3) estudo da datação pelo método da inclusão e comparação com o método do carbono 14.

4) estudo da datação pelo método da sensibilização e comparação com o método da inclusão.

5) datação pelo método da inclusão de peças arqueológicas oriundas de sítios arqueológicos do Brasil, da Argentina e do Perú.

#### V.1 ESTUDO DE ALGUMAS PROPRIEDADES TERMOLUMINESCENTES CARACTERÍSTICAS DO QUARTZO EXTRAÍDO DOS SOLOS, URNAS E CERÂMICAS

Com a finalidade de se saber em que condições é válida a utilização do quartzo na determinação da dose acumulada, procurou-se conhecer algumas das suas propriedades termoluminescentes características. As condições experimentais utilizadas foram:

A) SISTEMA ANALISADOR TERMOLUMINESCENTE DA HARSHAW\*

- alta tensão na fotomultiplicadora: 1,2 KV
- taxa de aquecimento da prancheta: 150°C/39segundos
- resposta à fonte padrão:  $(86,6 \pm 0,3) \text{ nC/10 s.}$

B) REGISTRADOR G 2500 DA VARIAN\*

- velocidade de registro: 250 IN/HR
- escala completa: 0,1 V

C) ALÍQUOTA DO FÓSFORO UTILIZADO EM CADA LEITURA TL

- volume da alíquota:  $(7,6 \pm 0,1) \text{ mm}^3$

Nas várias etapas dos diferentes estudos, alíquotas de quartzo foram irradiadas com radiação gama de uma fonte de césio 137. As exposições foram calculadas e verificadas experimentalmente por meio de dosímetros termoluminescentes  $\text{CaSO}_4$ : Dy e TLD-100 (LiF:Mg), preparados como descrito no item IV.3.3

V.1.1 CURVA DE EMISSÃO ("GLOW CURVE")

As curvas de emissão de várias amostras de quartzo extraído de diferentes peças arqueológicas encontram-se na figura V-1.

---

\* os valores apresentados são nominais, lidos na escala

## Curvas de emissão do quartzo

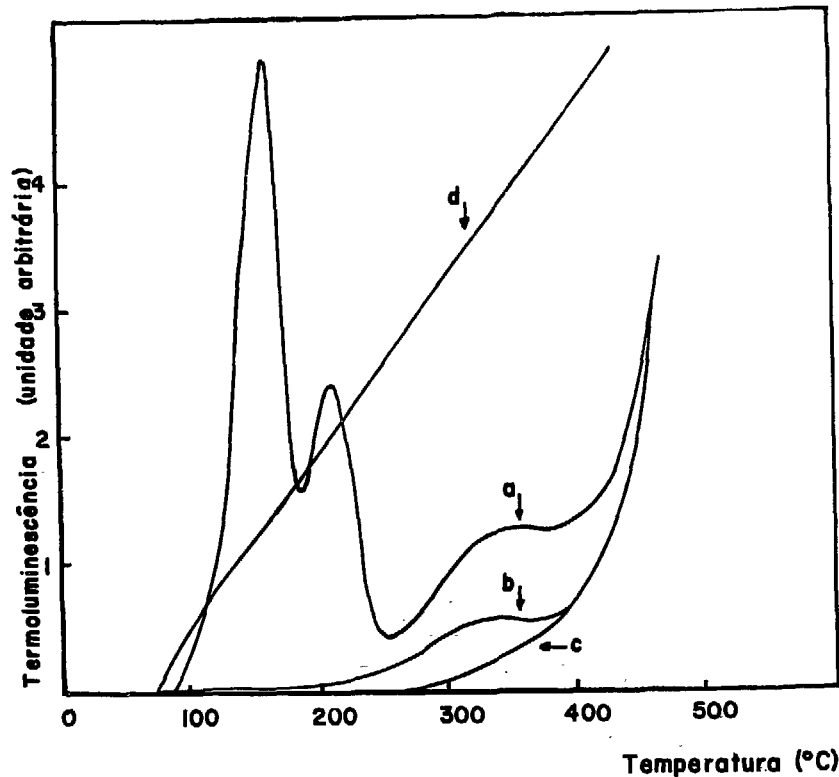


Figura V-1A Curvas de emissão de amostras de quartzo com granulção 74/177 mesh extraído de cerâmica proveniente do sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de São Paulo. Estas curvas foram obtidas com o analisador termoluminescente da Harshaw, modelo 2000 acoplado ao registrador da Varian, modelo G 2500.

curva a: curva de emissão da amostra produzida pela dose acumulada e por uma dose adicional de 160 rad de radiação gama de  $Cs^{137}$

curva b: curva de emissão da amostra produzida pela dose acumulada.

curva c: curva de emissão da panela

curva d: curva de aquecimento ( $150^{\circ}C/39s$ )

## Curvas de emissão do quartzo

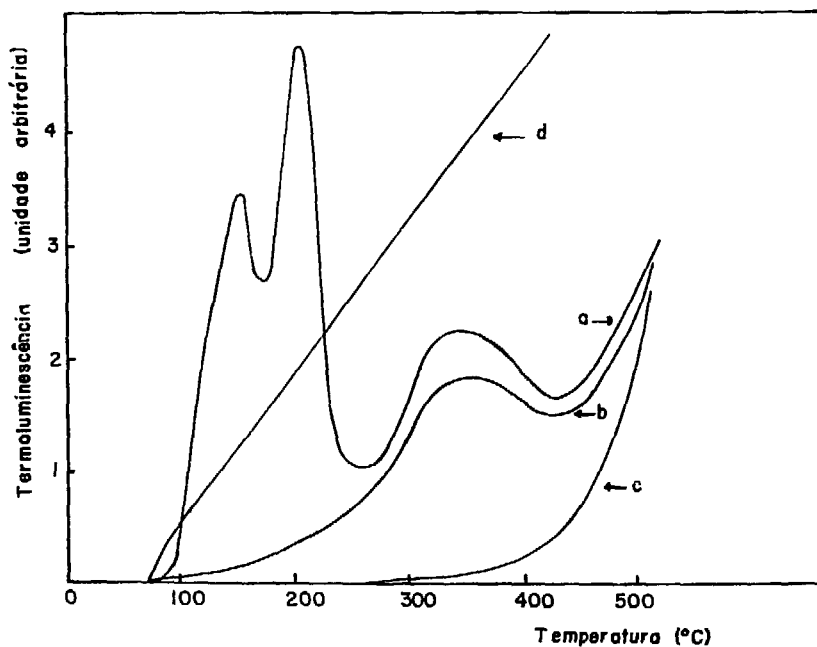


Figura V-1B Curvas de emissão termoluminescente de amostras de quartzo com granulação 74/177 mesh extraído de cerâmica proveniente de sítio arqueológico localizado na Argentina. Estas curvas foram obtidas com o analisador termoluminescente Harshaw, modelo 2000 acoplado ao registrador Varian, modelo G 2500.

curva a: curva de emissão da amostra produzida pela dose acumulada e por uma dose adicional de 160 rad de radiação gama de  $Cs^{137}$

curva b: curva de emissão da amostra produzida pela dose acumulada.

curva c: curva de emissão da panela

curva d: curva de aquecimento ( $150^{\circ}C/39s$ )

## Curvas de emissão do quartzo

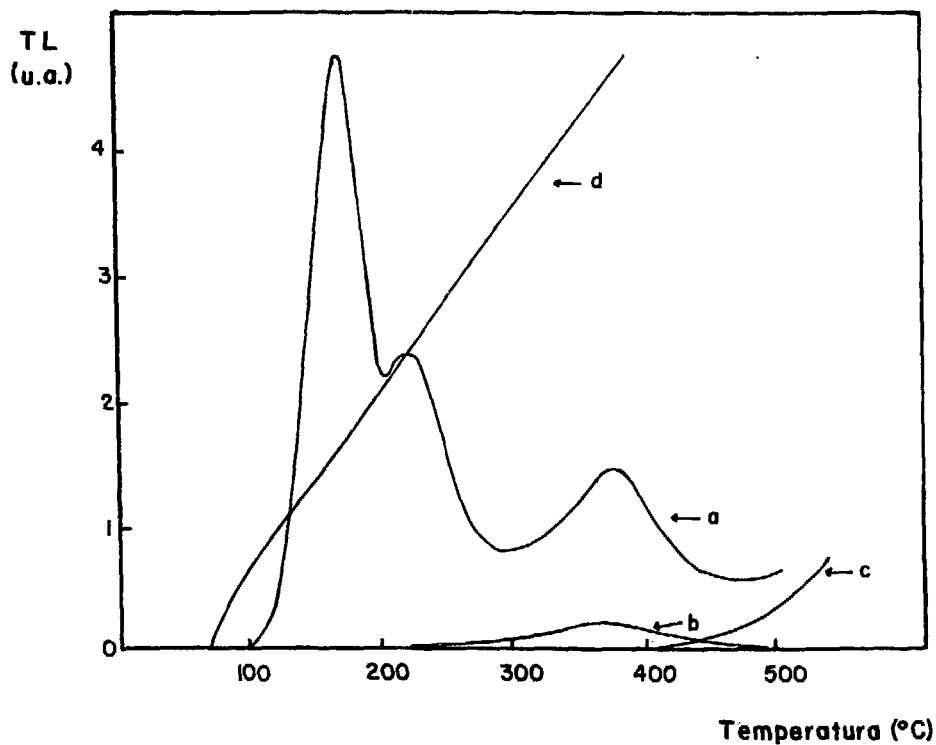


Figura V-1C Curvas de emissão termoluminescente de amostra de quartzo com granulação 74/177 mesh extraído de cerâmica proveniente de sítio arqueológico localizado na região de Araraquara. Estas curvas foram obtidas com o analisador termoluminescente Harshaw, modelo 2000 acoplado ao registrador Varian, modelo G 2500.

curva a: curva de emissão da amostra produzida pela dose acumulada e por uma dose adicional de 160 rad de radiação gama de  $\text{Cs}^{137}$

curva b: curva de emissão da amostra produzida pela dose acumulada

curva c: curva de emissão da panela

curva d: curva de aquecimento ( $150^{\circ}\text{C}/39\text{s}$ )

Na figura V-1, observa-se nitidamente a existência de três picos que serão denominados neste trabalho de picos I, II e III no sentido do aumento da temperatura. Nota-se ainda, que na curva de emissão do quartzo não irradiado é nítido apenas o pico III.

#### V.1.2 ESTUDO DA REPRODUTIBILIDADE DA CURVA DE EMISSÃO

A reprodutibilidade da curva de emissão para uma mesma amostra de quartzo é importante no processo de datação, pois a técnica utilizada neste trabalho, para a medida da termoluminescência, utiliza a altura do pico. Este estudo foi feito expondo diversas amostras à radiação gama da fonte de césio 137 e analisando-se a reprodutibilidade do pico III. As amostras utilizadas foram:

- CP.... cerâmica de Piraju
- CIS... cerâmica de Ilha Solteira
- CA.... cerâmica da Argentina
- SQP... solo queimado de Piraju

Os resultados obtidos encontram-se na tabela V-1. Da tabela pode-se ver que a reprodutibilidade do pico III oscila entre 0,5 e 4,5%. Este resultado é bastante satisfatório para os propósitos da datação de peças arqueológicas pelo método da termoluminescência.



TABELA V-1

Reprodutibilidade do pico III de diferentes amostras de quartzo submetidas a exposições de radiação gama de césio 137

amostra	exposição (R)	altura do pico (unidade arbitrária)	desvio percentual (%)
CP 61	160,2	$8,2 \pm 0,2$	2,4
CP 60	160,2	$6,6 \pm 0,3$	4,5
SQP59	160,2	$5,7 \pm 0,05$	0,5
CP 57	320,4	$9,4 \pm 0,2$	2,1
CA 52	160,2	$2,2 \pm 0,1$	4,5
CA 54	320,4	$4,0 \pm 0,1$	2,5
CIS45	320,4	$5,6 \pm 0,1$	1,8
SQP75	224,3	$3,4 \pm 0,1$	2,9
SQP76	762,2	$7,2 \pm 0,1$	2,1
SQP76	392,8	$4,9 \pm 0,05$	1,0
SQP76	615,2	$5,8 \pm 0,2$	3,4

V.1.3 ESTUDO DA VARIAÇÃO DA RESPOSTA TERMOLUMINESCENTE DO QUARTZO TRATADO COM PROCESSOS QUÍMICOS DIFERENTES

Com a finalidade de se verificar a variação da resposta termoluminescente do quartzo quando tratado com água régia ou com ácido clorídrico concentrado e frio utilizou-se o

quartzo extraído de peças cerâmicas e solos queimados.

Alíquotas de quartzo foram preparadas e irradiadas conforme descrito nos parágrafos IV.5.1 e IV.5.2.

Os resultados obtidos encontram-se na tabela V-2.

TABELA V-2

Resposta termoluminescente do quartzo quando submetido à diferentes exposições e tratamentos químicos

amostra	exposições (R)					
	80	200	400	600	800	1000
C64						
TL <sub>a.c.</sub>	1,0	2,0	3,5	6,5	8,0	9,5
TL <sub>a.r.</sub>	2,5	4,0	8,0	9,5	12,5	15,0
$\frac{TL_{a.r.}}{TL_{a.c.}}$	2,5	2,0	2,4	1,46	1,57	1,58
C63						
TL <sub>a.c.</sub>	-	2,3	4,2	5,4	7,5	-
TL <sub>a.r.</sub>	-	4,5	9,0	12,0	15,0	-
$\frac{TL_{a.r.}}{TL_{a.c.}}$	-	1,96	2,14	2,2	2,0	-
SQ1						
TL <sub>a.c.</sub>	5,0	-	11,0	15,0	19,0	22,0
TL <sub>a.r.</sub>	6,0	-	15,0	22,0	27,0	36,0
$\frac{TL_{a.r.}}{TL_{a.c.}}$	1,2	-	1,36	1,47	1,42	1,64

obs. Na tabela estão colocadas as alturas do pico III de diferentes amostras de quartzo.

Pode-se ver da tabela V-2 que a relação entre as respostas TL do quartzo tratado com água régia ( $TL_{a.r.}$ ) e aqueles com ácido clorídrico ( $TL_{a.c.}$ ) variaram de 1,46 a 2,5 no caso de amostras provenientes de cerâmicas e de 1,4 a 1,6 no caso de amostras provenientes de solo queimado. Os dados da tabela V-2 mostram que a amostra tratada com água régia apresenta maior TL que a amostra tratada com ácido clorídrico para a mesma exposição. Como para maiores TL pode-se ter precisão maior, neste trabalho a limpeza da superfície do quartzo foi feita sempre com água régia.

#### V.1.4 ESTUDO DA VARIAÇÃO DA RESPOSTA TERMOLUMINESCENTE COM A EXPOSIÇÃO À RADIAÇÃO GAMA

Com o objetivo de se estudar o comportamento da resposta termoluminescente do quartzo quando submetido a diferentes exposições da radiação gama do césio 137, prepararam-se oito amostras assim distribuídas:

- a) três amostras de cerâmica tratadas com água régia
- b) duas amostras de cerâmica tratadas com ácido clorídrico
- c) uma amostra de solo queimado tratada com ácido clorídrico concentrado e frio.
- d) uma amostra de cerâmica lavada com água régia, submetida à exposição de  $(2000 \pm 100)$  R de radiação gama de césio 137, recozida a  $500^{\circ}\text{C}$  durante 2 horas, e, em seguida resfriada rapidamente.
- e) uma amostra de solo queimado tratada com água régia

Varição da resposta termoluminescente do quartzo com a exposição à radiação gama

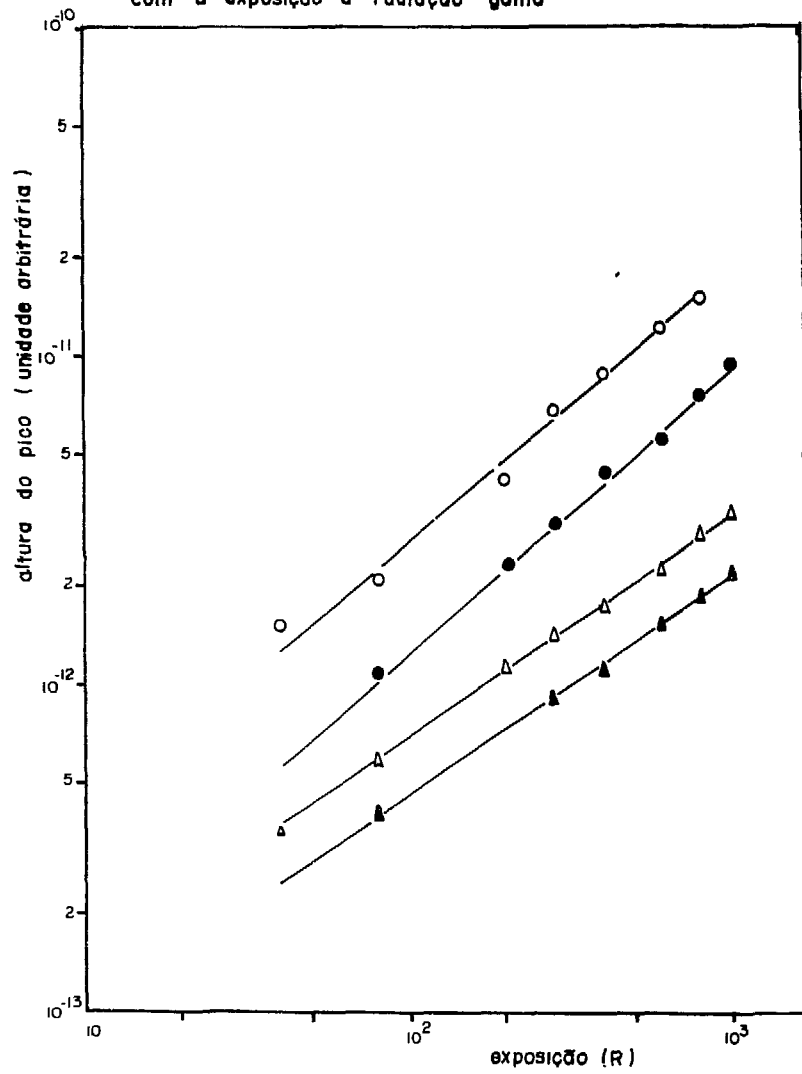


Figura V-2

Curva de resposta termoluminescente em função da exposição à radiação gama.

Varição da resposta termoluminescente do quartzo com a exposição à radiação gama

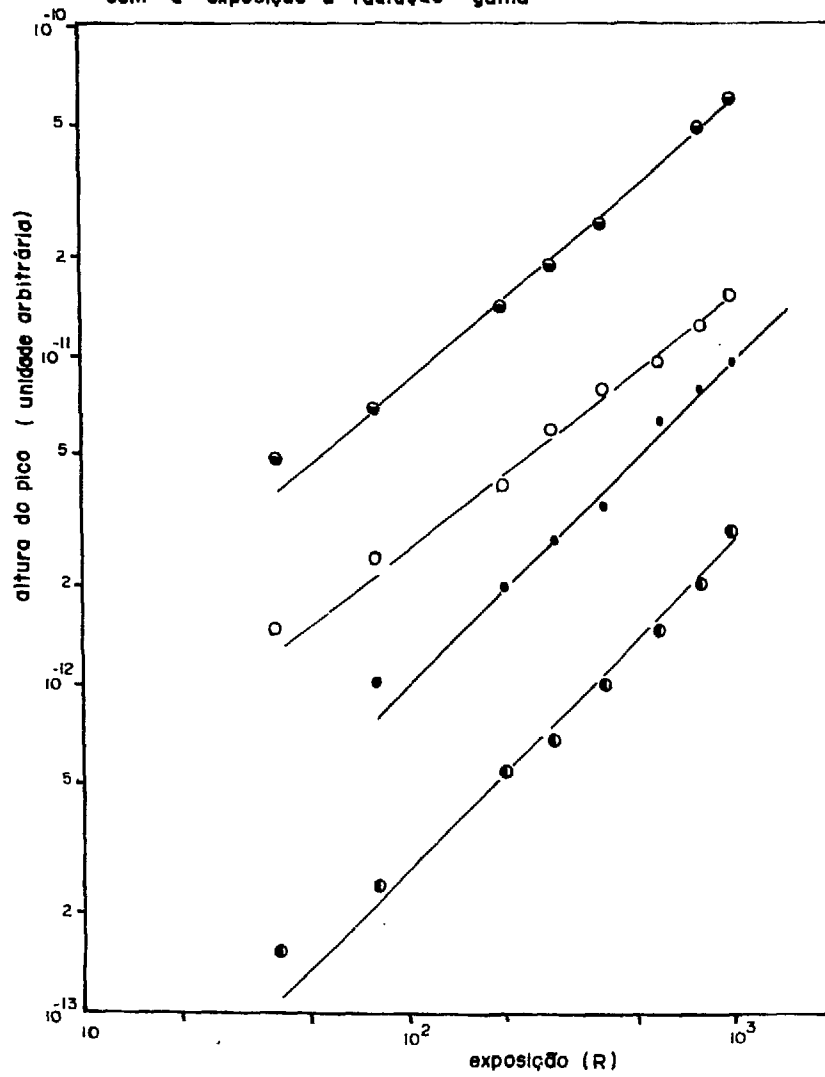


Figura V-2A

Curva de resposta termoluminescente em função da exposição à radiação gama.

As amostras foram submetidas as exposições de 40, 80, 200, 280, 400, 600, 800 e 1000R. Os resultados obtidos foram colocados em gráficos que se encontram na figura V-2.

A análise destes gráficos mostra que:

a) tôdas as amostras apresentam comportamento linear com a exposição desde 40 R até 1000R.

b) a inclinação dessas retas não é a mesma para todas as amostras.

#### V.2 ESTUDO DAS TAXAS DE DOSE DE SÍTIOS ARQUEOLÓGICOS

Com a finalidade de se verificar qual a variação da taxa de dose em diferentes níveis de um sítio arqueológico e em diversos sítios, utilizaram-se numerosos dosímetros termoluminescentes de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de TLD-100. Para a leitura dos dosímetros, foram construídas curvas de calibração.

##### V.2.1 CONSTRUÇÃO DA CURVA DE CALIBRAÇÃO PARA A LEITURA DOS DOSÍMETROS TERMOLUMINESCENTES DE TLD-100 E DE $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$

Tendo em vista a baixa taxa de dose anual das radiações beta e gama oriundas dos radionuclídeos naturais do solo, a construção da curva de calibração requer cuidados especiais.

Da tabela II-4 pode-se ver que as energias das radiações gama oscilam entre 0,22 e 1,46 MeV, isto é, a energia média é de 0,615 MeV, enquanto que a média das energias médias da radiação beta é 0,297 MeV.

Em vista desses valores, resolveu-se calibrar os dosímetros de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de TLD-100 utilizando-se uma fonte de césio 137 que emite radiação gama de 0,66 MeV e a outra de cobalto 60 cuja radiação gama tem energia de 1,25 MeV. As condições de exposição já foram mencionadas no item IV.3.2 e as exposições foram variadas desde 10 mR até 500 mR. A escolha deste intervalo de exposição foi feita considerando-se as taxas de dose de um solo de composição média e o período em que os dosímetros ficaram enterrados nos solos e nas amostras de solos dos sítios arqueológicos.

Os resultados obtidos foram colocados em gráficos que podem ser vistos na figura V-3.

#### V.2.2 ESTUDO DA TAXA DE DOSE EM DIFERENTES NÍVEIS ESTRATIGRÁFICOS DE UM SÍTIO ARQUEOLÓGICO.

As peças arqueológicas tem sido encontradas em diferentes níveis de um sítio arqueológico. Torna-se, assim, muito importante estudar a taxa de dose a diferentes profundidades. Com esta finalidade, colocaram-se vários dosímetros de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de TLD-100 no sítio arqueológico Almeida localizado no município de Piraju, estado de São Paulo.

Os resultados encontram-se na tabela V-3.

Pode-se observar da tabela V-3 que:

- 1) dentro de um desvio relativo máximo de 10%, a taxa de dose não varia com a profundidade em um mesmo local do sítio arqueológico.
- 2) quando se compara, à mesma profundidade, diferentes

pontos do sítio, o valor da taxa de dose não se altera.

Em virtude das observações acima pode-se considerar, para os propósitos deste trabalho, que a taxa de dose é constante no sítio arqueológico Almeida e seu valor médio é 182mrad/ano.

TABELA V-3

Taxas de doses a diferentes profundidades medidas com dosímetros de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de TLD-100 no sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de São Paulo.

quadra	profundidade (cm)	taxa de dose anual (mrad/ano)
I8	30	180 $\pm$ 20
I8	50	185 $\pm$ 20
G1	50	185 $\pm$ 20
F10	30	160 $\pm$ 15
O	60	190 $\pm$ 20
O	120	200 $\pm$ 20
P2/3/4	50	165 $\pm$ 15
P2/3/4	100	190 $\pm$ 20



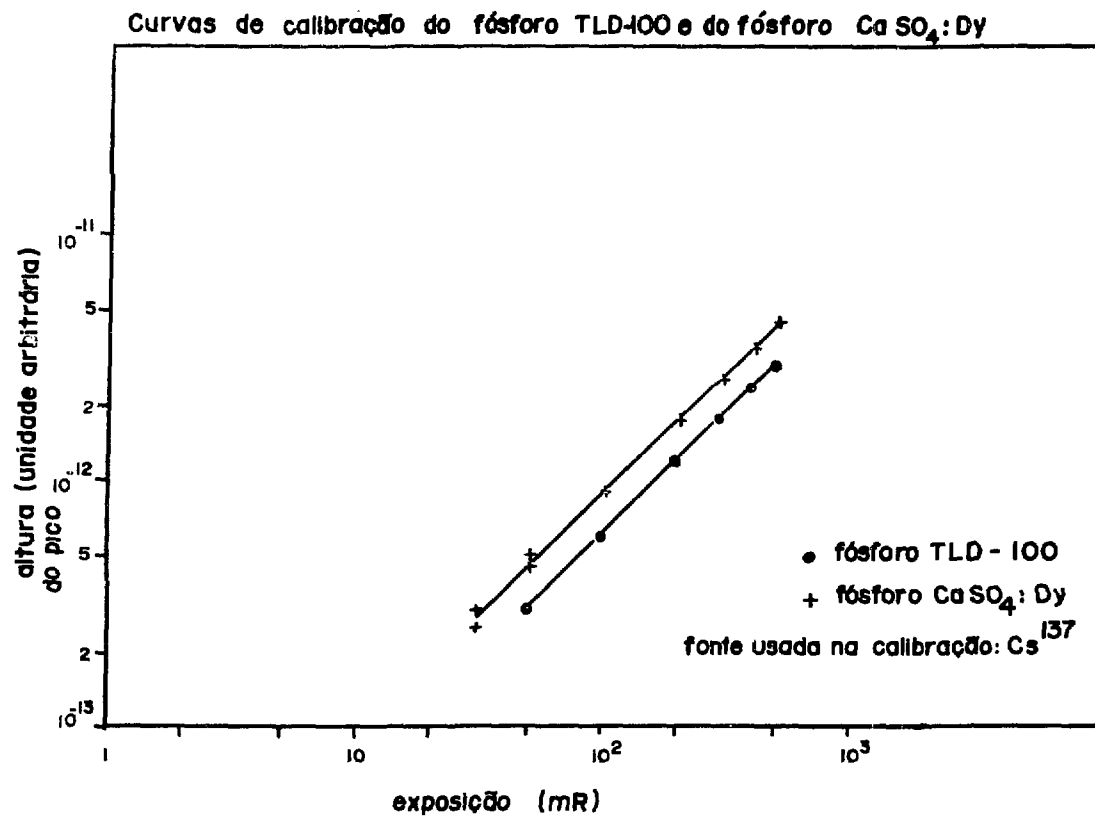


Figura V-3

V.2.3 ESTUDO DA VARIACÃO DA TAXA DE DOSE EM VÁRIOS SÍ-  
TIOS ARQUEOLÓGICOS

TABELA V-4

Taxas de dose de vários sítios arqueológicos medidos com dosímetros termoluminescentes de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de TLD-100.

sítios	intervalo de tempo. (dias)	dosímetros utilizados	dose acumulada no período. (mrad)	taxa de dose (mrad/ano)
Campinas	100	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$45 \pm 10$	$165 \pm 35$
	367	"	$220 \pm 20$	$215 \pm 20$
	519	"	$275 \pm 30$	$190 \pm 20$
	519	TLD-100	$200 \pm 30$	$185 \pm 30$
Piraju I	100	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$45 \pm 10$	$170 \pm 35$
	367	"	$300 \pm 30$	$290 \pm 30$
	519	"	$330 \pm 30$	$230 \pm 20$
	519	TLD-100	$270 \pm 50$	$190 \pm 30$
Piraju II	367	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$185 \pm 20$	$185 \pm 20$
	519	"	$325 \pm 30$	$230 \pm 20$
	519	TLD-100	$320 \pm 50$	$225 \pm 35$
P.N. do Xingu I	372	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$190 \pm 20$	$185 \pm 20$
P.N. do Xingu II	372	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$175 \pm 15$	$170 \pm 15$
Ilha Solt.	372	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$155 \pm 15$	$150 \pm 15$
Ilha Solt.	372	$\text{CaSO}_4:\text{Dy}$	$160 \pm 15$	$160 \pm 15$

Com a finalidade de se estudar a variação da taxa de dose nos diferentes sítios arqueológicos, enterraram-se em vários deles dosímetros termoluminescentes de  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$  e de TLD 100 em diferentes profundidades e durante diversos intervalos de tempos. Os resultados encontram-se na tabela V-4.

O exame da tabela V-4 mostra que em um mesmo sítio arqueológico, os valores das taxas de dose apresentam desvios que oscilam em torno de 10%.

Considerando os desvios das taxas de doses e as finalidades do presente trabalho, pode-se tomar para a taxa de dose dos diferentes sítios arqueológicos, um valor médio de 183 mrad/ano.

### V.3 ESTUDO DA DATAÇÃO PELO MÉTODO DA INCLUSÃO E COMPARAÇÃO COM COM O MÉTODO DO CARBONO 14

#### V.3.1 DATAÇÃO DE CERÂMICA

Na aplicação do método da inclusão utilizou-se o pico III do quartzo que apresenta meia vida da ordem de  $3,5 \cdot 10^9$  anos<sup>(23)</sup>. Com a finalidade de verificar a confiabilidade nos resultados obtidos pelo método da termoluminescência, procurou-se determinar a dose acumulada em fragmentos de urna, provenientes do sítio arqueológico Fonseca localizado no município de Itapeva, anteriormente datada por Szmuk<sup>(7)</sup>.

A preparação das amostras e a leitura da termoluminescência foram feitas conforme descrito anteriormente. Os resultados obtidos foram:

Curvas para cálculo de dose acumulada em urnas

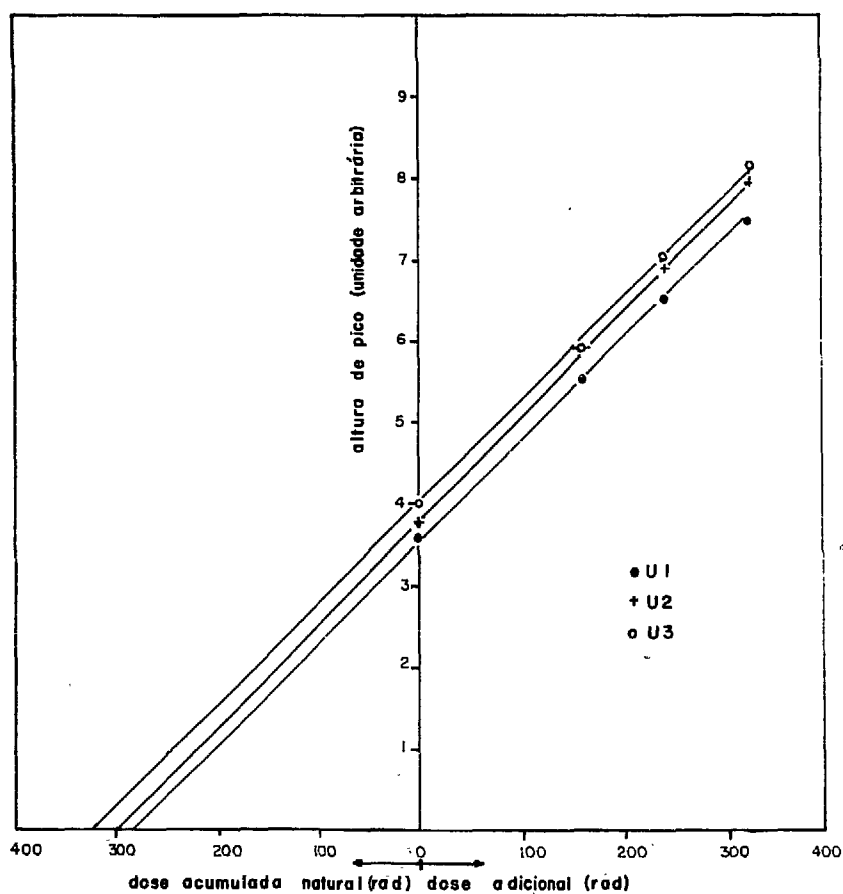


Figura V-4 Curva de resposta termoluminescente do quartzo de urnas oriundas do sítio arqueológico Fonseca localizado no município de Piraju, estado de São Paulo.

peça	dose acumulada (rad)
U-1	290 $\pm$ 30
U-2	300 $\pm$ 30
U-3	320 $\pm$ 30

Os valores acima foram obtidos utilizando-se o gráfico da figura V-4.

A seguir, procurou-se determinar a idade de uma peça arqueológica (cerâmica) já datada pelo método do carbono 14. Como na época deste trabalho não havia possibilidade de se determinar a taxa de dose devido ao meio ambiente em que foi encontrado a peça, estimou-se a dose anual gama ambiente em 80 mrad/ano<sup>(43)</sup>. A taxa de dose devido a cerâmica foi determinada a partir dos teores de urânio, de tório e de potássio.

O laboratório de Geocronologia do Instituto de Geociências da Universidade de São Paulo determinou o teor de potássio como sendo 0,5356%\*.

Os teores de urânio de tório foram calculados a partir da contagem da radiação alfa. Essa contagem deu como resultados:

número de "pares detetados" = 11 cont/hora\*\*  
 número de contagem da radiação alfa = 6 cont/minuto

---

\* Agradecemos ao prof. Dr. Koji Kawashita pela análise da amostra.

\*\*deste valor já foi descontado o número de "pares espúrios"

Curvas para cálculo de  $S_0, S_N = S_{N+r}$

exposição de sensibilização:  $(2100 \pm 100)$  R

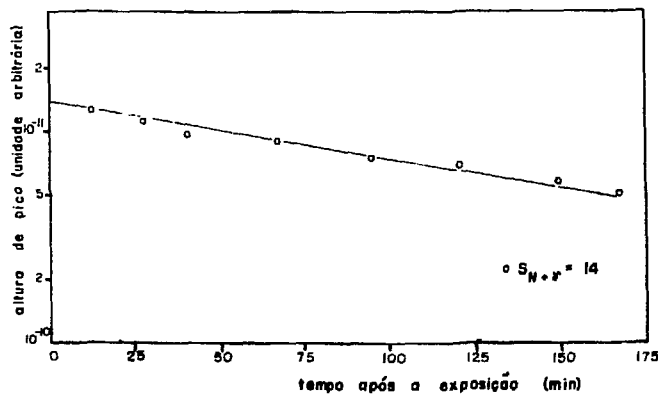
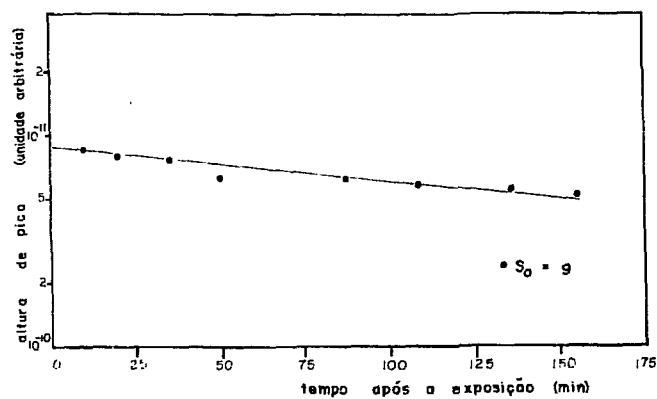
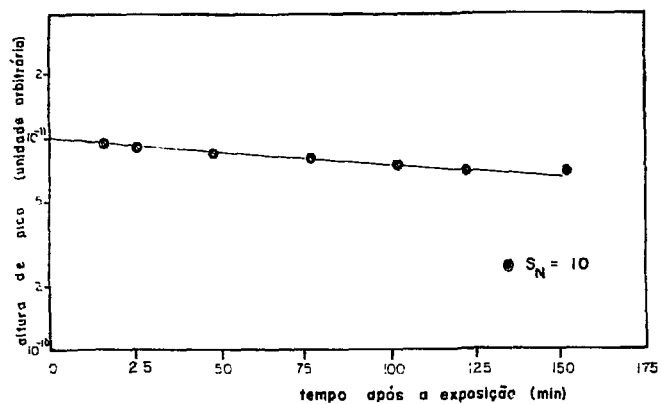


Figura V-8 Curva da resposta termoluminescente do quartzo de um fragmento de cerâmica proveniente de La Haguarda, Argentina.

Da equação 3.15 tem-se:

$$\begin{aligned} \text{número de desintegrações de Th}^{232} &= 12.N(\text{pares detetados}) \\ &= 12.11/60 \text{ desint./minuto} \end{aligned}$$

Como esse é o número de desintegrações que ocorre na massa  $m = \rho.V$  expressa em gramas de solo, o número de desintegrações na unidade de tempo e de massa de solo, de  $\text{Th}^{232}$  será:

$$\text{número de desintegrações de Th}^{232} = 12.11/(60.\rho.R_{\text{Th}}.A)$$

onde  $A$  é a área útil da placa de ZnS = 120,76 cm<sup>2</sup>

$R_{\text{Th}}$  é o alcance da radiação alfa emitida pela série do tório no solo (equação 3.18)

$\rho$  é a densidade do solo

Portanto, substituindo os valores, tem-se o número de desintegrações de  $\text{Th}^{232}$  na unidade de tempo e de massa: 2,42 desintegrações por grama de solo e por minuto.

Da equação 3.16, tem-se o número de desintegrações de  $\text{U}^{238}$  que é igual a  $(6-18.11/60)/2 = 1,35$  desintegrações/min.

Portanto, o número de desintegrações de  $\text{U}^{238}$  na unidade de tempo e de massa será:  $(1,35 \text{ desint./min})/(\rho.R_{\text{U}}.A)$ .

onde  $R_{\text{U}}$  é o alcance da radiação emitida pela série do urânio no solo.

Substituindo-se esses valores, tem-se que o número de desintegrações de  $\text{U}^{238}$  na unidade de tempo e de massa do solo é 1,81 desintegrações por grama de solo e por minuto.

Das tabelas III-6 e III-7 pode-se determinar a contribuição da radiação beta devido ao elemento potássio 40 e aos

elementos das séries do urânio e do tório. Na tabela V-5 apresenta-se a contribuição dos radionuclídeos existentes na peça arqueológica, na taxa de dose.

TABELA V-5

Taxa de dose devido aos radionuclídeos existentes na peça arqueológica cerâmica

	radiação beta	radiação gama
série do urânio	28 $\pm$ 4	9,5 $\pm$ 1,5
série do tório	19 $\pm$ 3	39 $\pm$ 5
elemento potássio	51 $\pm$ 7	13,5 $\pm$ 2
TOTAL	98 $\pm$ 10	62 $\pm$ 5

Portanto, a taxa de dose anual total será 170  $\pm$  20 mrad e as idades das duas peças de cerâmica serão:

peça	dose acumulada	idade por TL	idade por C-14
P31A	350 $\pm$ 30	1750 $\pm$ 350	1520
P31B	370 $\pm$ 40	1840 $\pm$ 360	1520

Os resultados das datações por termoluminescência e por carbono 14 são bastante concordantes o que permite depositar confiança no método da inclusão.



### V.3.2 DATAÇÃO DE SOLO QUEIMADO

Em diferentes níveis estratigráficos de sítios arqueológicos tem sido encontrados solos queimados, vestígios de antigas fogueiras. Com a finalidade de estudar a possibilidade de se utilizar esses solos queimados para datação, prepararam-se cinco amostras oriundas do sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de São Paulo.

Os resultados obtidos são satisfatórios quando comparados com os resultados de cerâmicas que foram encontradas em níveis estratigráficos próximos e se encontram na tabela V-6.

TABELA V-6

Doses acumuladas em solos queimados extraídos do sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de São Paulo.

peça	dose acumulada (rad).
SQ 72f15	200 $\pm$ 20
SQ 73F15	230 $\pm$ 20
SQ 74F'14	156 $\pm$ 15
SQ 75f' 15	300 $\pm$ 30
SQ 76F''14	600 $\pm$ 60

obs. os valores da tabela acima foram determinados a partir dos gráficos da figura V-5.

Curvas para cálculo de dose acumulada em solo queimado

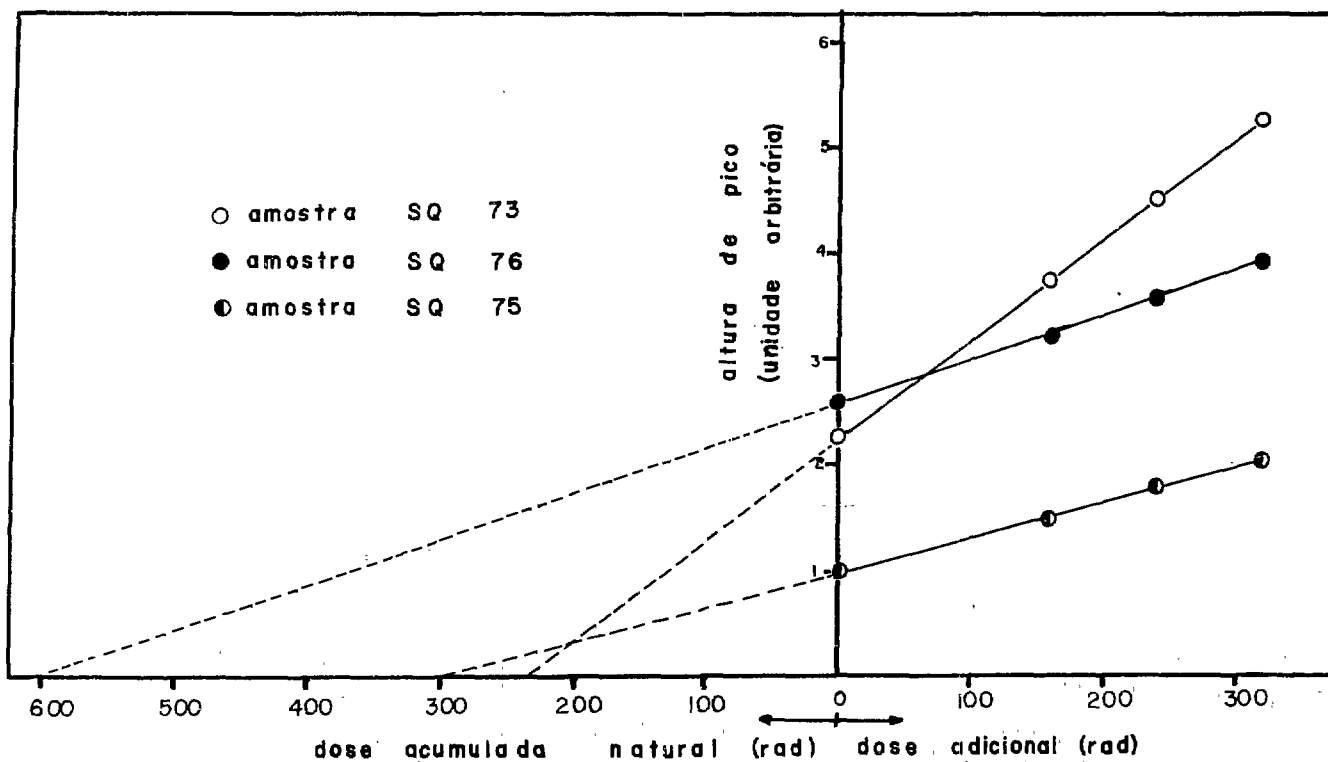


Figura V-5

Curva de resposta termoluminescente do quartzo de amostras de solo queimado de diferentes níveis estratigráficos do sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de S. Paulo.

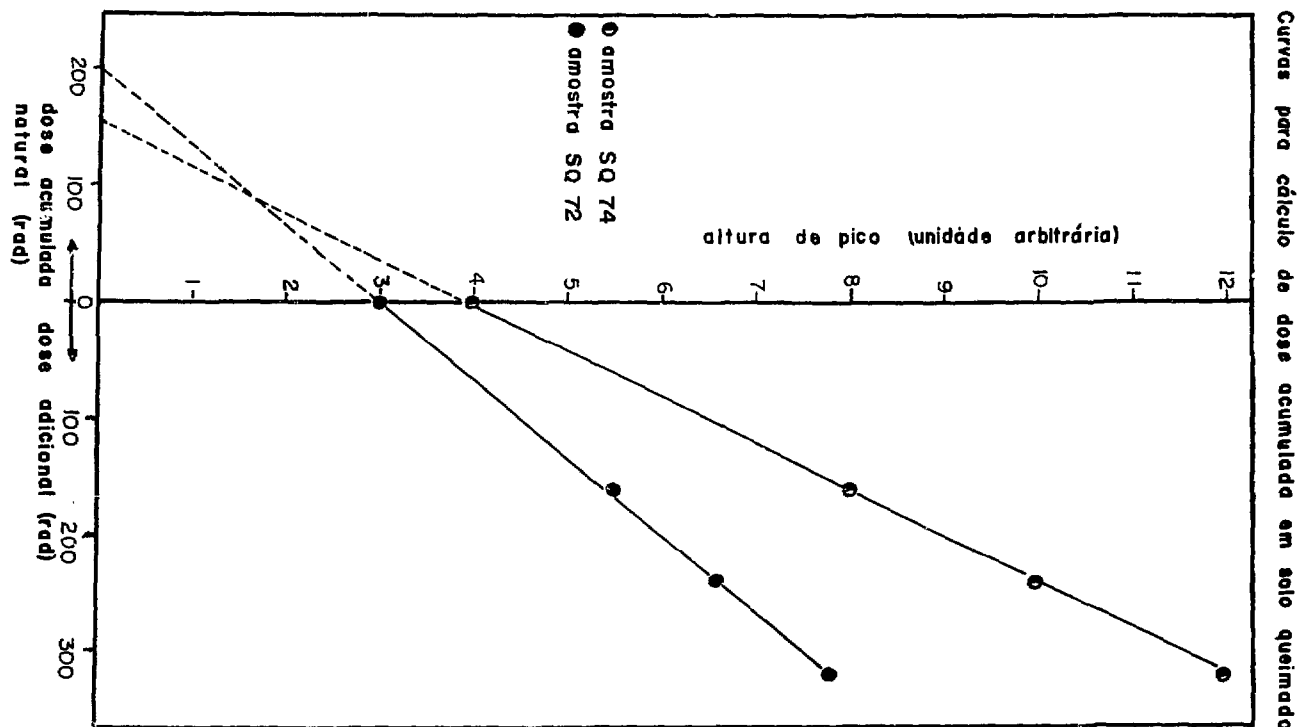


Figura V-5A Curva de resposta termoluminescente do quartzo de amostras de solo queimado de diferentes níveis estratigráficos do sítio arqueológico Almeida, localizado no município de Piraju, estado de S. Paulo.

V-4 ESTUDO DA DATAÇÃO PELO MÉTODO DA SENSIBILIZAÇÃO E COMPARAÇÃO COM O MÉTODO DA INCLUSÃO

Na datação pelo método da sensibilização utilizou-se o pico I cuja meia vida à temperatura ambiente é 145 minutos<sup>(23)</sup>. Em virtude desta meia vida bastante pequena, há um decaimento considerável da altura do pico entre a irradiação e a leitura termoluminescente à temperatura ambiente.

Assim, para contornar este problema e calcular os valores de  $S_0$ ,  $S_N$  e  $S_{N+\gamma}$  construíram-se gráficos log. da altura do pico I em função do tempo decorrido entre o término da exposição e a leitura da termoluminescência. A curva assim obtida foi extrapolada para o instante zero e se determinou desta forma a altura inicial do pico.

Para ensaiar o método, utilizou-se uma peça de cerâmica já datada pelo método da inclusão<sup>(7)</sup>, cujo valor da dose acumulada era 300 rad. A amostra foi preparada com as seguintes características:

granulação: 74 a 177 micra

exposição teste:  $(160 \pm 8)$  R

temperatura de recozimento:  $(500 \pm 50)^\circ\text{C}$

exposição de sensibilização:  $(2\ 100 \pm 100)$ F

Os resultados obtidos a partir do gráfico V-6 foram:

$$S_N = 9,4$$

$$S_0 = 9,0$$

$$S_{N+\gamma} = 12,0$$

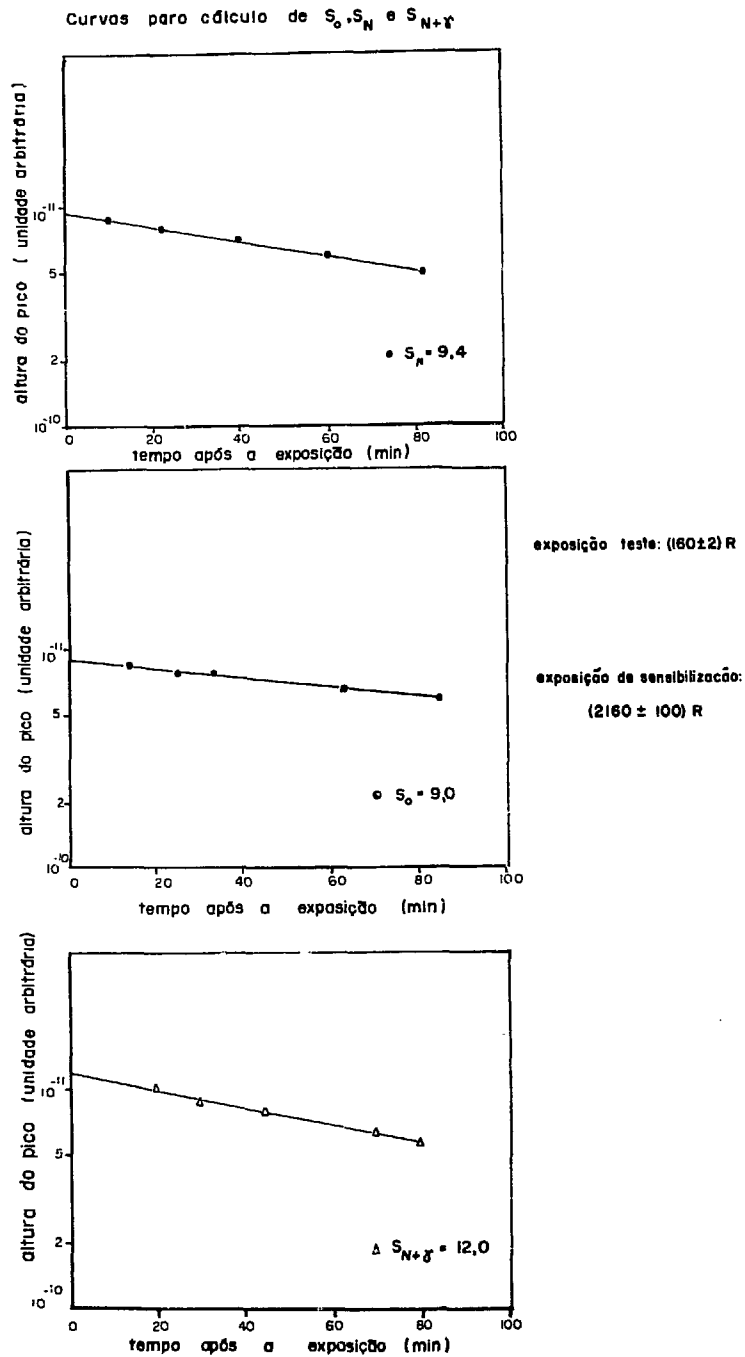


Figura V-6

Curva da resposta termoluminescente do quartzo de um fragmento de cerâmica (Piraju I) oriundo do sítio arqueológico Fonseca, localizado no município de Piraju.

Portanto, como a dose acumulada é dada por

$$D.A. = \frac{(S_N - S_0)}{(S_{N+\gamma} - S_N)} \cdot D$$

ela vale  $(320 \pm 40)$  rad.

Pode-se ver que este resultado é bastante próximo àquele dado pelo método da inclusão. A seguir, prepararam-se duas peças de cerâmicas oriundas da Argentina e do Brasil e observou-se a dose acumulada pelos métodos da sensibilização e da inclusão. Os resultados obtidos a partir das figuras V-7 e V-8 encontram-se na tabela V-7.

TABELA V-7

Doses acumuladas determinadas pelos métodos da sensibilização e da inclusão.

peça	dose acumulada (rad)	
	método da sensibilização	método da inclusão
Brasil (I.S.)	$470 \pm 70$	$390 \pm 40$
Argentina (La Haguarda)	$530 \pm 80$	$630 \pm 60$

O método da sensibilização, usando um pico de temperatura mais baixa que o do método da inclusão, permite obter u

ma corrente de termoluminescência maior, que pode ser detetada com um aparelho pouco sensível. Por outro lado, esse pico tem uma meia vida pequena; então para se conseguir grande precisão seria necessário que a fonte para calibração estivesse junto ao sistema analisador termoluminescente.

V-5 DATAÇÕES DE PECAS ORIUNDAS DE SÍTIOS ARQUEOLÓGICOS DO BRASIL, DA ARGENTINA E DO PERÚ PELO MÉTODO DA INCLUSÃO.

Em vista das condições do laboratório e dos métodos de datação por termoluminescência, escolheu-se o método da inclusão para a datação rotineira de peças arqueológicas oriundas de vários sítios. Os resultados dessas datações encontram-se na tabela V-8.

TABELA V-8

Idades das peças arqueológicas oriundas de sítios arqueológicos localizados no Brasil, na Argentina e no Perú pelo método da termoluminescência.

I. Sítio arqueológico localizado em Lima temprano, Hacienda Lauri, Valle de Chancay - Perú

peças	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC31	400 $\pm$ 40	180 $\pm$ 30	2200 $\pm$ 400
PC93A	380 $\pm$ 40		2100 $\pm$ 400
PC93B	350 $\pm$ 40		1900 $\pm$ 400
PC93	360 $\pm$ 40		2000 $\pm$ 400

Curvas para o cálculo de  $S_0$ ,  $S_N$  e  $S_{N+T}$

exposição de sensibilização:  $(2100 \pm 100) R$

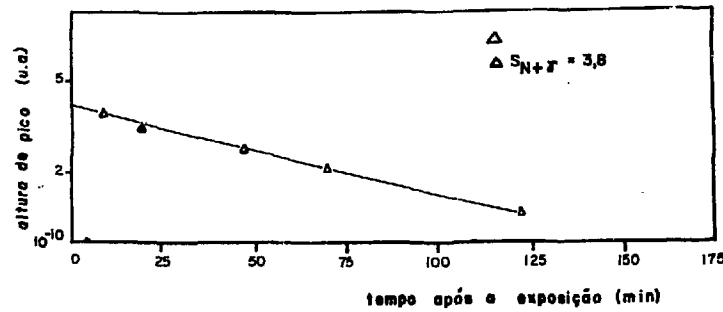
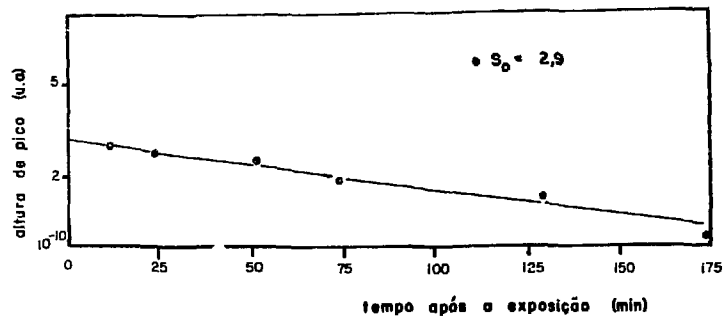
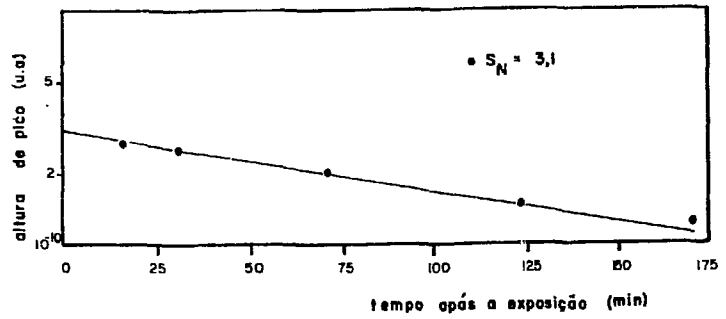


Figura V-7

Curva de resposta termoluminescente de ali-  
quota de quartzo de um fragmento de cerâmi-  
ca proveniente de um sítio localizado em  
Ilha Solteira, Brasil.



## II. Sítio arqueológico Almeida, município de Piraju, SP

peças	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC40	100 $\pm$ 10	260 $\pm$ 25	380 $\pm$ 50
PC41	68 $\pm$ 5		260 $\pm$ 40
PC57	552 $\pm$ 50		2100 $\pm$ 300
PC59	94 $\pm$ 10		360 $\pm$ 50
PC60	104 $\pm$ 10		400 $\pm$ 50
PC61	400 $\pm$ 40		1500 $\pm$ 250
PC79	475 $\pm$ 50		1800 $\pm$ 300
PC80'	600 $\pm$ 50		2300 $\pm$ 300
SQ63	680 $\pm$ 50		2600 $\pm$ 300
SQ64A	260 $\pm$ 20	280 $\pm$ 25	930 $\pm$ 150
SQ64B	290 $\pm$ 25		1000 $\pm$ 150
SQ64C	240 $\pm$ 25		930 $\pm$ 150
SQ64D	220 $\pm$ 20		750 $\pm$ 100
SQ72	230 $\pm$ 20		830 $\pm$ 120
SQ74	140 $\pm$ 10		500 $\pm$ 70
SQ75A	300 $\pm$ 30		110 $\pm$ 20
SQ75B	400 $\pm$ 40		1300 $\pm$ 200
SQ76A	600 $\pm$ 50		2200 $\pm$ 300
SQ76B	620 $\pm$ 50		2200 $\pm$ 300
SQ76C	680 $\pm$ 50		2500 $\pm$ 350

## III. Sítios arqueológicos localizados no vale do Paranapanema e na alta noroeste do estado de São Paulo.

peças	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC32:SP.DU.1.RNA21	500 $\pm$ 50	240 $\pm$ 20	2000 $\pm$ 300
PC33A:SP.BA.65.RNA10	150 $\pm$ 15		650 $\pm$ 100
PC33B "	125 $\pm$ 10		520 $\pm$ 75
PC34:SP.BA.69.RNA14	300 $\pm$ 30		1250 $\pm$ 200
PC42A:SP.DU.2			
sítio SERENGHETTI	50 $\pm$ 5		210 $\pm$ 40
PC42B "	60 $\pm$ 5		270 $\pm$ 40
PC44:SP.PD.1			
sítio ARY CARNEIRO	400 $\pm$ 40		1600 $\pm$ 250

## PC45:SP.TA.3

sítio 3 Lagoas	350	$\pm 30$	1400	$\pm 200$
----------------	-----	----------	------	-----------

## PC84

sítio Bela Vista	120	$\pm 10$	500	$\pm 80$
PC85:TA.2.RNA.27	250	$\pm 25$	1000	$\pm 150$

## PC87:SP.TA.5

sítio Boa Esperanca	280	$\pm 25$	1200	$\pm 200$
PC91:BA.67.RNA.12	100	$\pm 10$	420	$\pm 50$
PC92:BA.65.RNA.10	400	$\pm 40$	1600	$\pm 250$
PC94:SP.BA.69.RNA.14	290	$\pm 30$	1200	$\pm 200$
PC95:SP.TA.1.RNA.26	330	$\pm 30$	1400	$\pm 200$
PC96:SP.DU.1.RNA.21	550	$\pm 50$	2300	$\pm 300$

## IV. Sítios arqueológicos localizados na Argentina

peças	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC1	270 $\pm 50$	200 $\pm 20$	1360 $\pm 200$
PC2	460 $\pm 40$		2300 $\pm 300$
PC3	85 $\pm 10$		420 $\pm 50$
PC5	360 $\pm 35$		1800 $\pm 300$
PC6	180 $\pm 20$		900 $\pm 150$
PC7	100 $\pm 10$		525 $\pm 75$
PC9	240 $\pm 20$		1200 $\pm 200$
PC11A	540 $\pm 50$		2700 $\pm 400$
PC11B	520 $\pm 50$		2600 $\pm 400$
PC48A	330 $\pm 30$		1650 $\pm 250$
PC48B	302 $\pm 30$		1500 $\pm 200$
PC52A	625 $\pm 50$		3100 $\pm 500$
PC52B	680 $\pm 50$		3400 $\pm 500$
PC53	340 $\pm 30$		1700 $\pm 250$
PC54	250 $\pm 25$		1300 $\pm 200$

## V. Sítio arqueológico localizado no Parque Nacional do Xingu

peça	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC55	260 $\pm 25$	250 $\pm 25$	1050 $\pm 150$

VI. Sítios arqueológicos localizados na região de Araraquara e Tatuí.

peças	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC65A	120 $\pm$ 10	250 $\pm$ 25	480 $\pm$ 50
PC66T	180 $\pm$ 20		720 $\pm$ 100

VII. Sambaqui localizado no litoral de Santa Catarina

peças	dose acumulada (rad)	taxa de dose (mrad/ano)	idade (anos)
PC77	220 $\pm$ 20	250 $\pm$ 25	800 $\pm$ 120
PC78	450 $\pm$ 40		1800 $\pm$ 300
PC105	250 $\pm$ 25		1000 $\pm$ 150
PC106	500 $\pm$ 50		2000 $\pm$ 300

## CAPÍTULO VI

### CONCLUSÕES E SUGESTÕES

#### VI.1 CONCLUSÕES

1) Foram datadas numerosas peças arqueológicas brasileiras, argentinas e peruanas com um erro de 15%.

2) Os métodos de datação por termoluminescência apresentam resultados concordantes com aqueles obtidos com o método do carbono 14.

3) Nas condições em que foi desenvolvido o presente trabalho, o método da inclusão mostrou-se mais preciso que o método da sensibilização.

4) A utilização dos dosímetros TLD-100 e  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ , na determinação da taxa de dose anual devido aos radionuclídeos existentes no meio ambiente da peça arqueológica em diversos níveis de diferentes sítios, apresentou resultados com boa reprodutibilidade e com boa margem de segurança.

5) A técnica utilizada na determinação da dose acumulada no método da inclusão permite verificar se a resposta termoluminescente é linear ou supralinear em função da exposição.

6) Verificou-se que , para uma certa exposição, as alí

quotas de uma amostra de quartzo lavadas com água régia apresentam uma resposta termoluminescente maior que aquelas lavadas, a frio, com ácido clorídrico concentrado. A lavagem com água régia permite obter uma reprodutibilidade na curva de emissão, da ordem de 5%.

7) Há possibilidade bastante segura de se utilizar o solo queimado na datação pela termoluminescência. Este fato é bastante importante pois:

a) o solo queimado é encontrado frequentemente em diferentes níveis nos sítios arqueológicos, mesmo naqueles em que a cerâmica se escasseia.

b) como o processo de datação por termoluminescência destrói a peça arqueológica, o uso do solo queimado diminui sensivelmente o uso de cerâmica e urnas que são de grande valor para a Arqueologia.

c) como a temperatura de queima do solo é inferior à da cerâmica, a separação do quartzo do solo queimado é mais fácil que a da cerâmica.

d) elimina a necessidade do exame dos teores de urânio, de tório e de potássio da peça arqueológica mais os do solo em que a peça se encontrava enterrada, pois o próprio solo é parte integrante do solo queimado.

e) o solo queimado, normalmente, encontra-se associado a restos de carvões ou de matérias orgânicas, permitindo um interrelacionamento mais próximo entre o método do carbono 14 e o método da termoluminescência.

VI-2 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

1) estudo da sensibilização dos picos II e III do quartzo para a sua utilização na datação pelo método da sensibilização

2) estudos detalhados de sítios arqueológicos utilizando do solos queimados e cerâmicas de diferentes níveis estratigráficos

3) estudo de outros métodos de datação utilizando a propriedade termoluminescente como por exemplo o método da subtração que em princípio não utiliza o efeito das radiações dos radionuclídeos naturais do meio ambiente em que se encontrava a peça arqueológica

4) estudo da coleta e do uso de outros materiais arqueológicos para a datação.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1) WATANABE, S. Propriedades de TL do LiF:Mg. São Paulo, 1968. 85p. (Tese de Livre Docência)
- 2) CAMERON, J.R. et alii. Thermoluminescent dosimetry. Madison, The University of Wisconsin Press, 1968. 235p.
- 3) OKUNO, E. Propriedades termoluminescentes do fluoreto de cálcio natural. São Paulo, 1971. 141p. (Tese de Doutorado)
- 4) CRUZ, M.T. Propriedades termoluminescentes da fluorita brasileira de coloração violeta. São Paulo, 1972. 149p. (Tese de Doutorado)
- 5) MORATO, S.P. Modelo contínuo para armadilhas termoluminescentes. São Paulo, 1970. 74p. (Dissertação de Mestrado)
- 6) DEUS, S.F. Estudo comparativo de dosímetros fotográficos, termoluminescentes e radiofotoluminescentes. São Paulo, 1971. 84p. (Dissertação de Mestrado)
- 7) SMUK, P. Datação de peças arqueológicas pela TL. São Paulo, 1970. 68p. (Dissertação de Mestrado)
- 8) MENDES, J.C. Conheça a pré-história brasileira. São Paulo, Editora da Universidade, 1970. 153p.
- 9) PALLESTRINI, L. Sítio arqueológico Fonseca. São Paulo, Museu Paulista da Universidade de São Paulo, 1969. 104p.
- 10) PALLESTRINI, L. Supra estrutura e infra estrutura arqueológicas no contexto ecológico brasileiro. Revta. Mus.

Paul., São Paulo, 20:7-32, 1972/1973.

- 11) MORAES, A.V. Estudo do material lítico da coleção "Limur" do Museu Paulista. Revta. Mus. Paul., São Paulo, 20:33-107, 1972/1973.
- 12) FLEXOR, J.M. Medida da radiação específica  $C^{14}/C^{12}$ : aplicação ao estudo do comportamento dinâmico do carbono no solo. São Paulo, 1972. 93p. (Tese de Doutorado)
- 13) MUCCILLO, R. Dosimetria termoluminescente de neutrons com  $CaF_2$  natural. São Paulo, 1970. p3-4. (Dissertação de Mestrado)
- 14) SPIERS, F.W. Radiation units and theory of ionization dosimetry. In: HINE, G.J. & BROWNELL, G.L. Radiation Dosimetry. 5.ed. New York, Academic Press, 1967. p.13-6.
- 15) AITKEN, M.J. et alii. Thermoluminescent dating of ancient pottery. Nature, London, 219:442-44, 1968.
- 16) SCHWEIZER, F. Investigation of firing temperature. Archaeometry, Oxford, 13(2):89-141, 1971.
- 17) ZIMMERMAN, D.W. Thermoluminescent dating using fine grains from pottery. Archaeometry, Oxford, 13(1):29-52, 1971.
- 18) FLEMING, S.J. Thermoluminescent dating: refinement of the quartz inclusion method. Archaeometry, Oxford, 12(2):133-45, 1970.
- 19) FLEMING, S.J. Thermoluminescent authenticity testing of ancient ceramics: the effects of sampling by drilling. Archaeometry, Oxford, 13(7):59-69, 1971.



- 20) FLEMING,S.J. New techniques of thermoluminescent dating of ancient pottery. In: Proceedings of the Third International Conference on Luminescence Dosimetry, held at Danish AEC Research Establishment, Risø, 11-14 Oct. 1971. RISØ, V.Mejdahl, 1971. p.895-929.
- 21) RANDALL,J.T. & WILKINS,M.H.F. Phosphorescence and electron traps. Proc. R. Soc.(A), London: 184:366 e 390 , 1945.
- 23) INSTITUTE OF ENVIRONMENTAL CONTROL ADMINISTRATION. Bureau of Radiological Health and Training. Radiological Health Handbook. Rockville, Maryland, 1970.p.74, 83,85,110,113.
- 24) INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS. Radiation quantities and units. Washington, ICRU, Sept.1, 1968. p.1-6. (Report 11)
- 25) WEHR,M.R. & RICHARD JR.,J.A. Física do átomo. São Paulo, Editora da Universidade, 1965. p.277-8.
- 26) WEAST,R.C.,ed. Data concerning the solar system. In: Handbook of chemistry and physics. 50.ed. Cleveland, Chem.Rubber, 1969/70, p.F-145.
- 27) MAYNEORD,W.V. & HILL,C.R. Natural and man made background radiation. In: ATTIX,F.H. et alii, ed. Radiation dosimetry. 2.ed. New York, Academic Press, 1969. v.3, p.404,415,425,428,436.
- 28) ADAMS,J.A.S. Laboratory gama ray spectrometer for geochemical studies. In: ADAMS,J.A.S. & LOWDER,W.M.,eds. The natural radiation environmental. Chicago, University of Chicago Press, 1964. p.485-94.

- 29) GUSTAFSON, P.F. & BRAR, S.S. Measurement of gamma emitting radionuclides in soil and calculation of the dose arising therefrom. In: ADAMS, J.A.S. & LOWDER, W.M., eds. The natural radiation environmental. Chicago, University of Chicago Press, 1964, p.499-512.
- 30) PRICE, W.J. Properties of nuclear radiation. In: \_\_\_\_\_ . Nuclear radiation detection. New York, McGraw-Hill, 1958. p.7,9,13,19.
- 31) TURNER, R.C. et alii. The alpha-ray activity of human tissues. Br. J. Radiol., London, 368(31):397-406, 1958.
- 32) ATEN JR., A.H.W. et alii. Measurements of low level environmental radiation by means G.M. counters with observations in the Amsterdam area. Physica, 27:809-20, 1961.
- 33) WALTER, F.J. & BOSCHART, R.R. Low background counting of betas and alphas with silicon detectors. Nucl. Instrum. Meth., Amsterdam, 42:1-14, 1966.
- 34) KATHREN, R.L. & BRODSKY, A. Accuracy and sensitivity of film measurements of gamma radiation. - pt.III. Hlth Phys., New York, 9:769-77, 1963.
- 35) PIESCH, E. Routine dosimetry with phosphate glasses. In: Proceedings of Second International Conference on Luminescence Dosimetry held at Mountain View Hotel, Gatlinburg, Tennessee, September 23-26, 1968. p.833.
- 36) JONES, D.E. et alii. Natural radiation background dose

- measurements with  $\text{CaF}_2:\text{Dy}$  TLD. In: Proceedings of the Third International Conference on Luminescence Dosimetry, held at Danish AEC Research Establishment, Risø 11-14 Oct., 1971. Riso, V. Mejdahl, 1971. p.985-1001.
- 37) HALL, R.M. & LA ROCCA, J.P. Thermoluminescent dosimeters for environmental monitoring. Health Physics, New York 12:851-52, 1966.
- 38) DECICO, A. Condutividade térmica dos solos. São Paulo, 1967. (Tese de Doutorado)
- 39) JOHNS, H.E. & LAUGHLIN, J.S. Interaction of radiation with matter. In: HINE, G.J. & BROWNELL, G.L. Radiation dosimetry. 5. ed. New York, Academic Press, 1967. p.67.
- 40) PRICE, W.J. Properties of nuclear radiation. In: \_\_\_\_\_ . Nuclear radiation detection. New York, McGraw-Hill, 1958. p.16-9.
- 41) KOSKIN, N. & SHIRKEVICH, M. Heats of combustion of some fuels. In: Handbook of elementary physics. Moscow, Foreign Languages Publ. House, s.d. p.73.
- 42) VERDADE, F.C. Análise química total. In: MONIZ, A.C., ed. Elementos de pedologia. São Paulo, Editora da Universidade, 1972. p.209-15.
- 43) MEJDAHL, V. Dosimetry problems related to the thermoluminescent dating of ancient ceramics. In: Proceedings of Second International Conference on Luminescence Dosimetry, held at Mountain View Hotel, Gatlinburg, Tennessee, September 23-26, 1968. Gatlinburg, 1968. p.868-88.

- 44) MCANDREW, J Calibration of a Frantz Isodynamic separator and its application to mineral separation. In: Proceedings the Australasian Institute and Metallurgy, 1957 p.57-73.
- 45) YAMASHITA, T. et alii. Calcium sulfate phosphor activated by rare earth. In: Proceedings of Second International Conference on Luminescence Dosimetry, held at Mountain View Hotel, Gatlinburg, Tennessee, September 23-26, 1968. p.4-15.

