

## Tesis Doctoral

# Detección de radionucleidos cosmogénicos mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores

Rodríguez Ferreira Maltez, Darío Pablo

2016-03-15

Este documento forma parte de la colección de tesis doctorales y de maestría de la Biblioteca Central Dr. Luis Federico Leloir, disponible en [digital.bl.fcen.uba.ar](http://digital.bl.fcen.uba.ar). Su utilización debe ser acompañada por la cita bibliográfica con reconocimiento de la fuente.

This document is part of the doctoral theses collection of the Central Library Dr. Luis Federico Leloir, available in [digital.bl.fcen.uba.ar](http://digital.bl.fcen.uba.ar). It should be used accompanied by the corresponding citation acknowledging the source.

Cita tipo APA:

Rodríguez Ferreira Maltez, Darío Pablo. (2016-03-15). Detección de radionucleidos cosmogénicos mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores. Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires.

Cita tipo Chicago:

Rodríguez Ferreira Maltez, Darío Pablo. "Detección de radionucleidos cosmogénicos mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores". Facultad de Ciencias Exactas y Naturales. Universidad de Buenos Aires. 2016-03-15.

**EXACTAS** UBA

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales



**UBA**

Universidad de Buenos Aires



UNIVERSIDAD DE BUENOS AIRES

Facultad de Ciencias Exactas y Naturales

Departamento de Física

*Detección de radionucleidos cosmogénicos mediante la técnica de  
espectrometría de masas con aceleradores*

Tesis presentada para optar al título de  
Doctor de la Universidad de Buenos Aires en el área Ciencias Físicas

por ***Darío Pablo Rodrigues Ferreira Maltez***

Director: Dr. Guillermo Martí

Director asistente: Dr. Andrés Arazi

Lugar de Trabajo: Laboratorio TANDAR  
Comisión Nacional de Energía Atómica

Fecha de defensa: 15 de marzo de 2016



## *Resumen*

Una extensa variedad de radionucleidos son producidos por la interacción de los rayos cósmicos de alta energía con la atmósfera de nuestro planeta y con el polvo interplanetario que eventualmente puede arribar a él. Entre estos radionucleidos se encuentran el  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} \sim 1,4 \times 10^6$  años) y el  $^{53}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} \sim 3,7 \times 10^6$  años), que gracias a sus largos períodos de semidesintegración, resultan adecuados como trazadores en procesos de interés geofísico cuyos tiempos característicos son del orden de los millones de años. Además, el  $^{53}\text{Mn}$ , por producirse esencialmente fuera de nuestro planeta, es un excelente trazador de la depositación de material extraterrestre sobre la Tierra. Debido a sus concentraciones, de una parte en  $10^9$  hasta una parte en  $10^{15}$  respecto de sus isótopos estables, y actividades específicas extremadamente bajas, estos radionucleidos sólo pueden ser identificados y cuantificados mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores (AMS). En este trabajo se aplicó la técnica AMS para la detección de estos radionucleidos con el objeto de estudiar el reciclado de sedimentos submarinos durante la subducción de placas tectónicas y la tasa de depositación de polvo interplanetario en nuestro planeta. En el primer caso las muestras analizadas fueron cenizas y rocas volcánicas y sedimentos extraídos de hasta 250 metros de profundidad por debajo del fondo submarino. En el segundo caso, se analizó una muestra de 1.400 kg de nieve antártica. Todas las muestras fueron procesadas químicamente para la extracción y concentración del elemento de interés y la supresión del isóbaro que interfiere en las mediciones de AMS.

Las mediciones de las relaciones isotópicas fueron llevadas a cabo utilizando cuatro aceleradores de diferentes laboratorios, aprovechando las ventajas técnicas de cada uno. Finalmente, mediante el modelado de estos procesos y sobre la base de los resultados obtenidos fue posible determinar rangos para el porcentaje de sedimentos submarinos que participan de la formación de magmas durante la subducción de la placa tectónica de Nazca y establecer una cota superior para la cantidad de polvo interplanetario que ingresa a nuestro planeta.

Además de estas dos aplicaciones geofísicas, en el marco de este trabajo se implementó la técnica AMS en las instalaciones del Acelerador TANDAR de forma cuantitativa. Para ello se construyó un sistema de detección que, haciendo uso de las altas energías posibles en este acelerador, permitió la identificación del radionucleido  $^{10}\text{Be}$  con la completa supresión de su isóbaro estable  $^{10}\text{B}$ . De este modo, se consiguieron en el Acelerador TANDAR, mediciones de relaciones isotópicas  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  tan bajas como  $5 \times 10^{-13}$ , nivel de sensibilidad suficiente para realizar la mayoría de los estudios geofísicos con este radionucleido.

*Palabras claves:* Espectrometría de Masas con Aceleradores, Subducción de placas tectónicas, Polvo interplanetario, AMS,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ .



## **Cosmogenic radionuclides detection by Accelerator Mass Spectrometry technique**

### *Abstract*

A wide variety of radionuclides are produced by the interaction of high-energy cosmic rays with the Earth's atmosphere and with the interplanetary dust that can eventually reach it. Among these radionuclides are the  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} \sim 1.4 \times 10^6$  years) and  $^{53}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} \sim 3.7 \times 10^6$  years), that thanks to its long half-lives, are suitable as tracers in processes of geophysical interest whose characteristic times are of the order of millions of years. In addition, the  $^{53}\text{Mn}$  is an excellent tracer for deposition of extraterrestrial material on Earth because is essentially produced outside our planet. Due to its concentrations of one part in  $10^9$  to a part in  $10^{15}$  with respect to their stable isotopes, and extremely low specific activities, these radionuclides can only be identified and quantified by Accelerator Mass Spectrometry (AMS) technique. In this work, we applied the AMS technique for the detection of these radionuclides in order to study the marine sediment recycling during subduction of tectonic plates and the deposition rate of interplanetary dust on our planet. In the first case, the analyzed samples were volcanic ashes and sediments taken from up to 250 meters deep below the seabed rocks. In the second case, a sample of 1400 kg of Antarctic snow was analyzed. All samples were chemically processed for extraction and concentration of the element of interest and for suppressing the interfering isobar in AMS measurements.

The measurements of isotopic ratios were carried out using four different accelerators, taking advantage of the technical characteristics of each one. Finally, by modeling these processes and on the basis of the results obtained it was possible to determine the ranges of percentage of submarine sediments involved in the formation of magmas during the subduction of the Nazca tectonic plate and, set an upper limit for the amount of interplanetary dust entering our planet.

Besides these two geophysical applications, in the context of this work, the AMS technique was quantitatively implemented in TANDAR accelerator facility. For this, capitalizing the high potential energy in this accelerator, a detection system was built. It allowed the identification of radionuclide  $^{10}\text{Be}$  with complete suppression of its stable isobar  $^{10}\text{B}$ . Thus,  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  isotope ratio measurements as low as  $5 \times 10^{-13}$  were achieved in the accelerator TANDAR, sensitive enough for most geophysical studies with this radionuclide.

*Key words:* Accelerator Mass Spectrometry, Tectonic plate subduction, Interplanetary dust, AMS,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{53}\text{Mn}$



*A María Emilia Ruiz*





# Indice

<b>I</b>	<b>Marco general</b>	<b>1</b>
<b>1</b>	<b>Introducción</b>	<b>5</b>
1.1	Radionucleidos cosmogénicos . . . . .	5
1.2	Detección y aplicaciones . . . . .	6
1.3	Disposición del trabajo . . . . .	8
<b>2</b>	<b>Espectrometría de Masas con Aceleradores</b>	<b>11</b>
2.1	Espectrometría de masas convencional . . . . .	11
2.2	Ventajas del uso de aceleradores . . . . .	12
2.3	Importancia de la química en AMS . . . . .	14
2.4	Fuente de iones negativos . . . . .	15
2.5	Mecanismos de aceleración . . . . .	17
2.6	Procedimiento de medición . . . . .	18
2.7	Funciones del estándar . . . . .	19
2.8	Eficiencia de la técnica . . . . .	19
<b>3</b>	<b>Técnicas para la identificación de partículas</b>	<b>21</b>
3.1	Interacción de iones con la materia . . . . .	21
3.2	Identificación con cámara de ionización . . . . .	23
3.3	Frenado parcial y deflexión electrostática de pares isobáricos livianos . . . . .	23
3.4	Frenado completo del isóbaro que interfiere . . . . .	24
3.5	Separación de pares isobáricos pesados en un imán lleno de gas . . . . .	24
3.6	Interferencias isotópicas . . . . .	26

<b>II</b>	<b>Aplicaciones geológicas</b>	<b>27</b>
<b>4</b>	<b>Dinámica de sedimentos submarinos</b>	<b>31</b>
4.1	Escenario geológico . . . . .	31
4.2	Radiotrazadores . . . . .	33
4.3	Sedimentos submarinos . . . . .	34
4.4	Procesamiento químico de las muestras . . . . .	36
4.4.1	Lixiviación de la fracción autigénica . . . . .	36
4.4.2	Extracción del Be y Mn con supresión de B y Cr . . . . .	36
4.5	Resultados experimentales . . . . .	38
4.5.1	Mediciones de la relación isotópica $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ . . . . .	38
4.5.2	Mediciones de la relación isotópica $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ . . . . .	39
4.6	Análisis de los resultados . . . . .	42
4.6.1	Dilución por corrientes turbidíticas . . . . .	42
4.6.2	Datación de muestras y confirmación de falla . . . . .	44
4.6.3	Cálculo de tasas de sedimentación . . . . .	45
4.6.4	Inventario de $^{10}\text{Be}$ en sedimentos submarinos . . . . .	45
<b>5</b>	<b>Reciclado de sedimentos submarinos</b>	<b>47</b>
5.1	Antecedentes . . . . .	47
5.2	Modelado del reciclado de sedimentos . . . . .	48
5.2.1	Parámetros del modelo . . . . .	50
5.2.2	Hipótesis y rango de validez . . . . .	52
5.3	Cenizas y rocas volcánicas . . . . .	53
5.4	Procesamiento químico de las muestras . . . . .	53
5.4.1	Extracción de la fracción no meteórica . . . . .	55
5.4.2	Material portador utilizado . . . . .	55
5.5	Resultados experimentales . . . . .	56
5.5.1	Medición de $^{10}\text{Be}$ en material comercial . . . . .	56
5.5.2	Mediciones de $^{10}\text{Be}$ en cenizas y rocas volcánicas . . . . .	57
5.6	Análisis de los resultados . . . . .	58
5.6.1	Relación entre cenizas, rocas y muestra de control . . . . .	58
5.6.2	Participación de sedimentos en la conformación de magmas . . . . .	59

<b>III</b>	<b>Aplicaciones astrofísicas</b>	<b>61</b>
<b>6</b>	<b>Flujo de <math>^{53}\text{Mn}</math></b>	<b>65</b>
6.1	Antecedentes . . . . .	65
6.2	Planteamiento del problema . . . . .	66
6.3	Muestra: 1.400 kg de nieve antártica . . . . .	67
6.4	Procesamiento químico de la muestra . . . . .	69
6.4.1	Filtrado y acidificación . . . . .	70
6.4.2	Concentración de la muestra . . . . .	71
6.4.3	Extracción de cationes . . . . .	72
6.5	Resultados experimentales . . . . .	73
6.5.1	Ajuste de los parámetros del sistema . . . . .	74
6.5.2	Determinación del factor de supresión de $^{53}\text{Cr}$ . . . . .	76
6.5.3	Medición de la relación isotópica $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ . . . . .	77
6.5.4	Medición de la relación isotópica $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ . . . . .	78
6.6	Cálculo del flujo de $^{53}\text{Mn}$ . . . . .	79
<b>7</b>	<b>Supernovas cercanas</b>	<b>81</b>
7.1	Escenario astrofísico . . . . .	81
7.2	Consecuencias sobre el planeta Tierra . . . . .	84
7.3	Modelo de distancia efectiva . . . . .	85
7.3.1	Eficiencia de asimilación de la corteza . . . . .	85
7.3.2	Ángulo sólido y depositación . . . . .	86
7.4	Nueva cota para la distancia efectiva . . . . .	87
<b>8</b>	<b>Afluencia de polvo interplanetario</b>	<b>89</b>
8.1	Origen, características y evolución . . . . .	89
8.2	Antecedentes . . . . .	91
8.3	Planteamiento del problema . . . . .	91
8.4	Modelado de la producción de radionucleidos . . . . .	92
8.4.1	Producción de $^{53}\text{Mn}$ debida a rayos cósmicos galácticos . . . . .	93
8.4.2	Producción de $^{53}\text{Mn}$ debida a rayos cósmicos solares . . . . .	94
8.5	Cálculo de la concentración de $^{53}\text{Mn}$ en polvo interplanetario . . . . .	97
8.6	Cuantificación del polvo interplanetario . . . . .	98

<b>IV AMS con el acelerador TANDAR</b>	<b>99</b>
<b>9 Estado previo</b>	<b>103</b>
9.1 El acelerador TANDAR . . . . .	103
9.2 Antecedentes . . . . .	106
9.3 Marco de implementación . . . . .	107
9.4 Iones espurios y sus efectos en AMS . . . . .	108
<b>10 Implementación</b>	<b>111</b>
10.1 Diseño y construcción de un absorbente pasivo . . . . .	111
10.2 Simulación del detector . . . . .	113
10.3 Producción de patrones . . . . .	115
10.3.1 Irradiación neutrónica . . . . .	115
10.3.2 Dilución isotópica . . . . .	116
10.4 Método de medición empleado . . . . .	117
10.4.1 Sintonización de un radionucleido . . . . .	117
10.4.2 Ajuste de la óptica interna . . . . .	118
10.5 Resultados experimentales . . . . .	119
10.5.1 Eliminación de interferencias . . . . .	119
10.5.2 Medición de patrones . . . . .	122
10.6 Análisis de los resultados . . . . .	125
10.6.1 Valores medidos vs. esperados . . . . .	125
10.6.2 Determinación de la sensibilidad . . . . .	126
<b>V Conclusiones y apéndices</b>	<b>129</b>
<b>11 Conclusiones</b>	<b>131</b>
<b>A Cálculo de relaciones isotópicas</b>	<b>135</b>
<b>B Procedimientos químicos</b>	<b>139</b>
B.1 Lixiviación de sedimentos . . . . .	139
B.2 Marcha de cationes . . . . .	140
B.3 Oxidación del material y producción de cátodos . . . . .	141
<b>C Aceleradores utilizados</b>	<b>143</b>
C.1 SARA - Centro Nacional de Aceleradores, Sevilla . . . . .	143
C.2 VERA - <i>Vienna Institute</i> . . . . .	145
C.3 DREAMS - <i>Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf</i> . . . . .	147
C.4 MLL - <i>Maier-Leibnitz-Laboratorium</i> . . . . .	149

<b>D Sobre los sedimentos submarinos</b>	<b>151</b>
D.1 Litoestratigrafía . . . . .	151
D.2 Bioestratigrafía . . . . .	152
D.3 Tasa de sedimentación y fallas . . . . .	154
<b>E Sobre el polvo interplanetario</b>	<b>157</b>
<b>Bibliografía</b>	<b>171</b>



Parte I

Marco general





En esta primera parte de la tesis se desarrollará el marco general en el cual se sustenta la técnica de espectrometría de masas con aceleradores.

En el primer capítulo se introduce el trabajo abordando la definición misma de los conceptos que constituyen el título de esta tesis, tratando primero sobre los radionucleidos cosmogénicos y luego sobre su detección y sus múltiples aplicaciones. Se incluye además una descripción general de la forma en que se dispuso el texto de esta tesis.

En el segundo capítulo se introducen los aspectos técnicos de la espectrometría de masas con aceleradores, mostrando sus diferencias con la espectrometría de masas convencional y señalando las ventajas que sobrevienen del uso de aceleradores. Se trata la importancia de la química en el preparado de las muestras y su relación con la producción de haces en la fuente de iones de un acelerador. Se describe además el concepto de eficiencia de la técnica.

En el tercer capítulo, tras resumir modelos que describen la interacción de iones con la materia, se introducen técnicas nucleares para discriminar e identificar partículas. Se abordan en primer lugar las utilizadas en el marco de estas tesis dando luego una somera descripción de las técnicas habituales cuando se presentan interferencias isotópicas.



# 1

## Introducción

El estudio de un sistema mediante la utilización de trazadores tiene lugar en muchas ramas de la ciencia, ya que el seguimiento de algún elemento distintivo a lo largo de un proceso ofrece valiosa información sobre el mismo. Esta metodología puede aplicarse incluso a nivel atómico mediante el uso de material con una relación isotópica distinta a la del sistema en estudio. Dado que los diferentes isótopos de un mismo elemento tienen las mismas propiedades químicas, su comportamiento en la mayoría de los fenómenos de transporte, absorción y asociación molecular será muy similar. Este material trazador puede ser generado por un proceso propio del sistema o ser activamente agregado a efectos del estudio.

Entre los posibles átomos utilizados como trazadores se encuentran los radionucleidos, que por ser inestables y tener un determinado período de semidesintegración ( $T_{1/2}$ ), ofrecen además información sobre los tiempos involucrados en el proceso estudiado. Los radionucleidos naturales pueden provenir de distintas fuentes. Algunos de ellos, denominados primordiales, fueron originados junto con el sistema solar y la Tierra. Por lo tanto, en el presente solo se encuentran aquellos con períodos de semidesintegración no mucho menores que la edad de la Tierra ( $\sim 4.500$  Ma).

### 1.1 Radionucleidos cosmogénicos

Los radionucleidos de vida media más corta (menor que el 1 % de la vida de la Tierra) no provienen de procesos previos a la formación de la Tierra sino que son producidos en forma continua. Un mecanismo de producción es el decaimiento de radionucleidos primordiales y otro es la producción en reacciones de fraccionamiento de un núcleo atómico inducidas por rayos cósmicos en un proceso conocido como fragmentación (Lal y Peters, 1967). A estos últimos, producidos tanto fuera de nuestro planeta como dentro de él, se los denomina cosmogénicos.

Los rayos cósmicos pueden ser solares o galácticos, son principalmente protones y en menor medida partículas  $\alpha$  con una pequeña contribución de núcleos mas pesados y electrones. En nuestro planeta, las interacciones entre rayos cósmicos y núcleos atómicos ocurren principalmente en la atmósfera, ya que es allí donde pierden la mayor parte de su energía. En particular, la mayoría de los  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} = (1,387 \pm 0,012) \times 10^6$  a, Korschinek et al., 2010) que se encuentran en nuestro planeta fueron creados gracias a la fragmentación que producen neutrones secundarios generados en las cascadas desencadenadas por rayos cósmicos de alta energía, al impactar sobre los núcleos de oxígeno y nitrógeno que componen la atmósfera (McHargue y Damon, 1991). En la superficie terrestre, el fenómeno de fragmentación también ocurre pero es mucho menos probable. Sin embargo, dado que en la superficie hay átomos que no se encuentran en abundancia en la atmósfera, algunas de las reacciones producidas pueden ser de importancia para determinar la relación isotópica de ciertos radionucleidos (Lal y Peters, 1967).

La mayor parte del material interplanetario que ingresa a nuestro planeta (meteoritos, meteoroides, polvo) también sufrió el bombardeo de rayos cósmicos durante prolongados períodos de tiempo antes del ingreso, razón por la cual es de esperar que muestren anomalías en la relación isotópica de los elementos que los componen. El polvo interplanetario que ingresa a nuestro planeta, con altas concentraciones de radionucleidos cosmogénicos, aporta a la superficie elementos que *in situ* se crean en menor proporción. Entre ellos, el  $^{53}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = (3,7 \pm 0,4) \times 10^6$  a, Honda y Imamura, 1971) producto de la fragmentación producida por protones sobre núcleos de hierro (Schaefer et al., 2006). Para dar cuenta de la importancia de este fenómeno basta decir que nuestro planeta recibe del orden de las centenas de toneladas de polvo interplanetario por día (Plane, 2012).

## 1.2 Detección y aplicaciones

El arquetipo de los radionucleidos utilizados para datación es sin dudas el  $^{14}\text{C}$ , el cual, con un período de semidesintegración  $T_{1/2} = (5.730 \pm 30)$  años es ampliamente utilizado en arqueología. La idea básica es que conociendo la relación isotópica  $R_0 = ^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  en material orgánico vivo (en equilibrio isotópico con el medio ambiente), la relación isotópica en material orgánico muerto (fuera del equilibrio) se verá reducida en un factor dado por la ley de decaimiento exponencial:

$$R(t) = R_0 e^{-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} t} \quad (1.1)$$

de donde puede despejarse el tiempo  $t$  transcurrido desde que el material dejó de estar en equilibrio con el medio.

Pero la datación por  $^{14}\text{C}$  se limita a antigüedades de hasta diez períodos de semidesintegración, para la cual la relación  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$  disminuye en un factor  $10^3$ , quedando por debajo de los actuales límites de detección de la técnica ( $\sim 10^{-15}$ ). Tal es el caso en geología, en sistemas donde los tiempos involucrados son del orden de los millones de años. En este escenario, un radionucleido como el  $^{10}\text{Be}$  resulta más adecuado ya que su período de semidesintegración es del orden de los tiempos característicos de los procesos que se quiere estudiar.<sup>1</sup>

Debido a la baja concentración en que se encuentran en nuestro planeta y sus largas vidas medias, no es posible cuantificar la presencia de muchos de los radionucleidos cosmogénicos por ninguno de los métodos conocidos para medición de actividad por resultar estas extremadamente bajas; y tampoco es una opción la espectrometría de masas convencional a causa de las interferencias isobáricas tanto moleculares como atómicas (como se verá en el capítulo 2). Por estas razones la espectrometría de masas con aceleradores (AMS, por sus siglas en inglés), se presenta como la única técnica capaz de identificar y cuantificar la relación isotópica de estos radionucleidos cosmogénicos de larga vida media. Para su detección es necesario un acelerador de partículas, que consigue eliminar las interferencias moleculares y, mediante la utilización de sistemas de detección propios de la física nuclear para partículas cargadas aceleradas, permite además diferenciarlas de sus isóbaros nucleares.

Se mencionan a continuación, sin exhaustividad, aplicaciones de la técnica de AMS y los radionucleidos utilizados en cada caso:

- Estudio de material extraterrestre y rayos cósmicos ( $^{10}\text{Be}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ ).
- Evidencia de explosiones de supernovas ( $^{60}\text{Fe}$ ,  $^{244}\text{Pu}$ ).
- Tiempo de viaje de meteoritos que impactan la Tierra y estimación de su tamaño preatmosférico ( $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ).
- Producción de radionucleidos en rocas lunares ( $^{60}\text{Fe}$ ,  $^{53}\text{Mn}$ ).
- Producción y distribución de radionucleidos cosmogénicos y antropogénicos en la atmósfera ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{129}\text{I}$ ).
- Datación arqueológica ( $^{14}\text{C}$ ).
- Estudios en medicina forense ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ).
- Estudios in-vivo utilizando trazadores en plantas, animales y humanos ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ).
- Datación de aguas subterráneas, patrón de circulación de los océanos ( $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{129}\text{I}$ ).

---

<sup>1</sup>En sistemas donde los tiempos involucrados son mucho mayores que algunos millones de años, se puede datar utilizando los cocientes  $^{235}\text{U}/^{207}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} \sim 7 \times 10^8$  a) o  $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$  ( $T_{1/2} \sim 4,5 \times 10^9$  a).

- Estudio de paleoclima en sedimentos oceánicos, en glaciares y capas de hielo polar ( $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ).
- Variación temporal de la intensidad de rayos cósmicos ( $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ).
- Estudio de la erosión de rocas superficiales, estudio paleoclimático en lodo ( $^{10}\text{Be}$ ,  $^{129}\text{I}$ ).
- Subducción de placas tectónicas ( $^{10}\text{Be}$ ).
- Búsqueda de partículas exóticas, super pesadas, de carga fraccionaria y materia extraña.
- Medición de vidas medias.
- Medición de la temperatura de fusión del plasma ( $^3\text{H}$ ).
- Flujo de neutrones de la bomba de Hiroshima ( $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ).
- Salvaguardia Nuclear ( $^{236}\text{U}$ ).
- Detección de elementos traza en materiales semiconductores ( $^{236}\text{U}$ ,  $^{244}\text{Pu}$ ).

### 1.3 Disposición del trabajo

En este primer capítulo se trataron los conceptos que hacen al título de esta tesis. A continuación, en el capítulo 2, se presenta una descripción general de la técnica de AMS y en el capítulo 3, de los diferentes métodos de detección utilizados en este trabajo.

En las partes II, III y IV, se describe el trabajo realizado en el marco de esta tesis doctoral. La disposición elegida para su presentación consistió en agrupar las tareas según las razones científicas que las motivaron. Aspectos tales como la preparación química de las muestras y la medición de relaciones isotópicas están presentes en todo el trabajo y serán descriptos en cada capítulo en el contexto del estudio que los requirió. Descripciones particulares que no resultan esenciales para la comprensión del texto fueron incluidas en diferentes apéndices.

Una de las motivaciones científicas que tuvo esta tesis fue el estudio de un sistema de interés geológico: el reciclado de sedimentos submarinos durante la subducción de la placa de Nazca por debajo de la placa continental. Para ello se determinó la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{53}\text{Mn}$  en sedimentos submarinos extraídos de hasta 250 metros por debajo del fondo submarino, y en cenizas y rocas volcánicas de la Cordillera de los Andes utilizando la técnica de AMS. A través de los resultados obtenidos se estudiaron aspectos de la dinámica de los sedimentos acretados sobre la placa continental. Además, se desarrolló y evaluó un modelo que permitió establecer rangos para el porcentaje de sedimento que participa en la formación de magmas. Este estudio se desarrolla en la Parte II.

Otra de las motivaciones científicas de esta tesis fue el estudio de un problema de interés astrofísico: la cantidad de polvo interplanetario que ingresa en nuestro planeta diariamente. Para ello se determinó la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  y  $^{10}\text{Be}$  en una muestra de 1.400 kg de nieve antártica y con ello el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta. Luego, en base a un modelo de producción de radionucleidos en material extraterrestre fue posible establecer una cota superior a la masa de polvo interplanetario que ingresa a la Tierra. Utilizando el flujo de  $^{53}\text{Mn}$ , también se estableció una cota inferior para la distancia efectiva a la cual debieron ocurrir explosiones de supernova cercanas ( $\sim 100$  pc) que depositaron en nuestro planeta átomos de  $^{60}\text{Fe}$  detectados en trabajos recientes. Este estudio se discutirá en la Parte III.

Las mediciones que se condujeron para llevar adelante estas investigaciones fueron realizadas en cuatro laboratorios de reconocimiento internacional (CNA, Sevilla; VERA, Viena; DREAMS, Dresden; y MLL, Munich) cada uno de ellos con aceleradores de características muy diferentes. Las técnicas aplicadas para la detección de cada radionucleido dependieron no sólo de los isóbaros que interfieren en cada caso, sino de las características de la instalación en las que se llevó a cabo las mediciones. Los resultados obtenidos en cada una de estas instalaciones serán presentados y discutidos en los capítulos ya mencionados, mientras que sus detalles técnicos más relevantes fueron incluidos en el apéndice C.

Además de conducir los estudios mencionados, se trabajó en la implementación de la técnica de AMS en el Laboratorio TANDAR de la Comisión Nacional de Energía Atómica (CNEA) adaptándola a las características de esta instalación. En particular, se identificó  $^{10}\text{Be}$  lográndose, por primera vez en nuestro país, mediciones cuantitativas de su relación isotópica. Estas mediciones significaron la implementación y puesta a punto de un sistema de detección para la identificación del radionucleido  $^{10}\text{Be}$  y su discriminación de su isóbaro estable  $^{10}\text{B}$ . La descripción de estas tareas será presentada en la Parte IV.

Finalmente, en la Parte V se darán las conclusiones de este trabajo.





# 2

## Espectrometría de Masas con Aceleradores

En este capítulo se introducen los principios de la espectrometría de masas convencional (MS) y la mejora comparativa que implica el subsecuente uso de un acelerador (AMS). De esta última técnica se describen la importancia del procesamiento químico de una muestra y su relación con la fuente de iones del acelerador, los mecanismos de aceleración involucrados y su eficiencia. Las técnicas de medición se discuten en el capítulo 3.

### 2.1 Espectrometría de masas convencional

Esta técnica consiste básicamente en discriminar partículas cargadas según su masa utilizando el radio de giro de la curva que describen en presencia de un campo magnético.

Una partícula de carga  $q$  que se mueve con velocidad  $\vec{v}$  en presencia de un campo magnético  $\vec{B}$ , experimenta una fuerza

$$\vec{F} = q\vec{v} \times \vec{B} \quad (2.1)$$

conocida como fuerza de Lorentz. Por ser esta fuerza perpendicular a la velocidad, actúa como fuerza centrípeta del movimiento circular de radio  $\rho$ , siendo

$$F = \frac{m}{\rho} v^2. \quad (2.2)$$

Considerando en (2.1) que la velocidad es perpendicular al campo magnético e igualando con (2.2) resulta que

$$qB\rho = mv = p \quad (2.3)$$

donde  $p$  es el módulo de la cantidad de movimiento. En términos de la energía cinética  $E$ , la ecuación (2.3) puede reescribirse como

$$qB\rho = \sqrt{2mE} \quad (2.4)$$

La sensibilidad de esta técnica, gracias a la alta resolución alcanzada por los equipos comerciales ICP-MS (*Inductively coupled plasma mass spectrometry*) es de una parte en  $10^{10}$ , e incluso algo menor para algunos elementos (Greenfield, 1994). La imposibilidad de alcanzar mejores sensibilidades se debe principalmente a las interferencias isobáricas.

**Interferencias isobáricas moleculares** En la fuente donde se originan los iones a analizar pueden producirse uniones moleculares o aductos con la misma masa y carga eléctrica que las del ion de interés. Ejemplo de esto es la unión  $^9\text{BeH}$  que tiene casi la misma masa que el  $^{10}\text{Be}$  que se busca identificar (las pequeñas diferencias de masas nucleares no permiten su separación). Otro ejemplo es el radionucleido  $^{14}\text{C}$ , cuyas interferencias moleculares pueden provenir de  $^{13}\text{CH}$ ,  $^{12}\text{CH}_2$  o  $^7\text{Li}_2$ . La interferencias de estos iones, con intensidades solo cuatro órdenes menor que el  $^{12}\text{C}$ , limita drásticamente el alcance de la técnica de MS.

**Interferencias isobárica nucleares** Además de las uniones moleculares, los nucleidos isobáricos estables como el  $^{10}\text{B}$  para el caso del  $^{10}\text{Be}$  o el  $^{53}\text{Cr}$  para el caso del  $^{53}\text{Mn}$  pueden tener la misma carga y masa. En este caso, no podrán diferenciarse de sus isóbaros con la misma energía utilizando selectores magnéticos o eléctricos. Dado que la abundancia natural de los nucleidos estables es generalmente muy superior a la de los radionucleidos de interés, su interferencia limita fuertemente la sensibilidad del método MS, aún realizando previamente una supresión química de estos isóbaros en la muestra a medir.

## 2.2 Ventajas del uso de aceleradores

Combinar la espectrometría de masas convencional con una etapa de aceleración de las partículas a analizar, forma parte de ese conjunto de ideas que pasaron desapercibidas en un principio y fueron valoradas muchos años después.

En 1939, Alvarez y Cornog (1939) utilizaron un acelerador ciclotrón de 2,2 metros de diámetro en Berkeley para detectar  $^3\text{He}$ . Si bien este suele referenciarse como el primer experimento de AMS, increíblemente hubo que esperar 38 años para que se realizara el segundo, cuando Muller (1977), utilizando el mismo ciclotrón, midió  $^3\text{H}$  en agua. Fue entonces que se sugirió por primera vez que tanto  $^{14}\text{C}^1$  como  $^{10}\text{Be}$  podrían ser medidos utilizando aceleradores de partículas. Ese mismo año, dos grupos trabajando independientemente en las Universidades de McMaster y Rochester hicieron la primera medición directa de  $^{14}\text{C}$  en una muestra natural, utilizando aceleradores electrostáticos tipo tándem (Bennett et al., 1977, Nelson et al., 1977). Luego de estos experimentos, la

---

<sup>1</sup>Este radionucleido se descubrió en 1940, un año después de que Alvarez midiera  $^3\text{He}$ .

técnica se implementó rápidamente (utilizando en adelante aceleradores tándem) para otros radionucleidos de larga vida media, entre ellos:  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{236}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ , etc.

Agregar una etapa de aceleración de las partículas confiriéndoles mayor energía, proporciona dos grandes ventajas, a saber:

- Permite suprimir completamente las posibles interferencias moleculares haciendo que las partículas atraviesen una lámina ultra delgada o una celda de gas a baja presión (*stripper*). Así, producto de las interacciones con las cargas eléctricas de este medio material, las partículas aceleradas pierden los electrones de ligadura de las moléculas y se separan en sus átomos constituyentes.
- Aporta a las partículas la energía necesaria para aplicar sistemas de detección propios de la física nuclear que permiten discriminar partículas por su número másico  $A$  y atómico  $Z$ , diferenciando isótopos y/o isóbaros respectivamente.

Existen muchas otras técnicas dedicadas a la determinación de bajas concentraciones de diferentes analitos, como ejemplo de algunas de ellas se pueden mencionar: fluorescencia de rayos X, espectroscopia de emisión con plasma de acoplamiento inductivo (ICP-OES) y activación neutrónica. Sin embargo, todas ellas poseen sensibilidades que no son suficientes cuando se trata de muestras con relaciones isotópicas del orden de  $10^{-11}$  o menores. Otras técnicas, dedicadas a contar decaimientos radiactivos con muchísima precisión, como ser: métodos de centelleo líquido de bajo fondo, espectrometría alfa o gamma, tampoco son útiles en los casos de interés en esta tesis, ya que debido al bajo número de núcleos presentes en las muestras y su larga vida media, las actividades específicas resultan ser extremadamente bajas. Es en este escenario donde la técnica de AMS se vuelve imprescindible, ya que es capaz de identificar y contar los átomos en forma individual (literalmente de a uno) utilizando los elementos ópticos del acelerador sin necesidad de esperar a que decaigan.

AMS se presenta entonces como la técnica más sensible que existe para medir relaciones isotópicas de hasta una parte en  $10^{15}$  e incluso menores en algunos casos. Una gran ventaja de esta técnica es que con microgramos del elemento a analizar es suficiente para una medición con baja incerteza, lo que usualmente redundaría en la necesidad de tan solo miligramos o gramos de la muestra original. Como se verá en el capítulo 6, existen excepciones a esta regla.

Hasta aquí se han mencionado únicamente las ventajas de la técnica. Entre sus desventajas se puede mencionar que la técnica requiere de la utilización de un acelerador de partículas, que si bien cada vez se los fabrica más pequeños sin perder la capacidad de realizar estas mediciones (Steier et al., 2004) con la mayoría de los radionucleidos de interés (salvo para radionucleidos tales como  $^{60}\text{Fe}$  o  $^{53}\text{Mn}$ ), no deja de ser una instalación

costosa. También es costosa y laboriosa la preparación de la muestra en comparación con otras técnicas que no requieren la extracción y concentración del elemento a determinar. Debe tenerse en cuenta además, que la exigencia de un muy bajo nivel de fondo requiere de un trabajo químico muy limpio lo que en suma redonda en mucho tiempo dedicado a la preparación de las muestras.

## 2.3 Importancia de la química en AMS

La preparación de las muestras a medir por AMS es una parte fundamental del proceso de medición y puede significar el éxito o fracaso del mismo. Los cátodos que se colocan en la fuente de iones del acelerador cuentan con tan solo unos pocos miligramos del material a medir. Para producirlo es necesaria la extracción del elemento de interés de la muestra a estudiar y su posterior concentración. Al hacerlo se debe tener particular cuidado en no contaminar la muestra en modo alguno con el radionucleido que se pretende determinar, tarea difícil cuando se trata de relaciones isotópicas generalmente menores a  $10^{-9}$ .

En muchos casos, la extracción química del elemento de interés presente en la muestra no es posible de forma eficiente sin el agregado de cantidades bien conocidas de material portador. Este material debe contener los isótopos estables del radionucleido que se quiere extraer, con un contenido de este radionucleido significativamente menor que en la muestra ( $\sim 100$  veces inferior o menor) y preferentemente bien determinado. Es crítico entonces en este punto disponer de este material libre del radionucleido de interés, sin el cual la etapa de extracción química puede resultar prácticamente imposible o altamente ineficiente.

La preparación química de la muestra tiene un segundo rol no menos importante, y este es la supresión del elemento que luego interferirá en las mediciones con el acelerador, este es, el isóbaro estable del radionucleido a determinar. Si bien la supresión química no es suficiente para evitar que el isóbaro aparezca durante la medición en grandes cantidades en comparación con el radionucleido, si resulta de fundamental importancia disminuir su concentración significativamente (un factor  $\sim 10^{-5}$  -  $10^{-4}$ ) para posibilitar que los métodos de detección propios de la física nuclear sean capaces de identificar la partícula de interés.

Entre las hipótesis en que se sustenta la técnica, se encuentra el hecho de que no hay fraccionamiento isotópico durante la extracción química del elemento que se quiere analizar, básicamente por considerar que todos los aspectos químicos de los isótopos son los mismos. En otras palabras, las técnicas de extracción, concentración y supresión utilizadas no distinguen el número de neutrones del elemento en cuestión. También se trabajará sobre la hipótesis de homogeneidad isotópica de la muestra, justificada bajo el mismo argumento.

## 2.4 Fuente de iones negativos

Un acelerador tándem requiere de la inyección de iones negativos. Estos iones pueden estar compuestos por un átomo o una unión molecular (aducto) con un electrón adicional. Para esto, el mecanismo más utilizado en aceleradores dedicados a AMS es el de *sputtering* (pulverización) producido por cationes de  $\text{Cs}^+$ . Para ello, en un horno en vacío se calienta Cs cuyos vapores entran en contacto con la superficie del filamento caliente (ionizador), dónde los átomos de Cs pierden un electrón (ver figura 2.1). Los cationes  $\text{Cs}^+$  así producidos son acelerados hacia el cátodo por una diferencia de potencial  $V_c$  ( $\sim 6$  kV). De este modo el material de la muestra que está contenido en el cátodo es bombardeado por iones de  $\text{Cs}^+$ . Como consecuencia de este bombardeo un gran número de átomos y moléculas son eyectados desde el cátodo. Algunas de ellas, abandonan el cátodo con un electrón en exceso, como aniones atómicos o moleculares de la sustancia colocada en el cátodo.

Los iones negativos extraídos de la muestra son acelerados en sentido contrario al de los cationes  $\text{Cs}^+$ , dirigiéndose hacia el ionizador. A partir de allí son atraídos por el potencial  $V_e$  ( $\sim 28$  kV respecto del ionizador) de una lente electrostática de extracción (ver figura 2.1). Los iones negativos, con una energía inicial  $E_i = e(V_c + V_e)$ , son entonces dirigidos hacia una primera etapa de selección magnética (según describe la ecuación (2.4)) realizada por el imán inyector del acelerador.

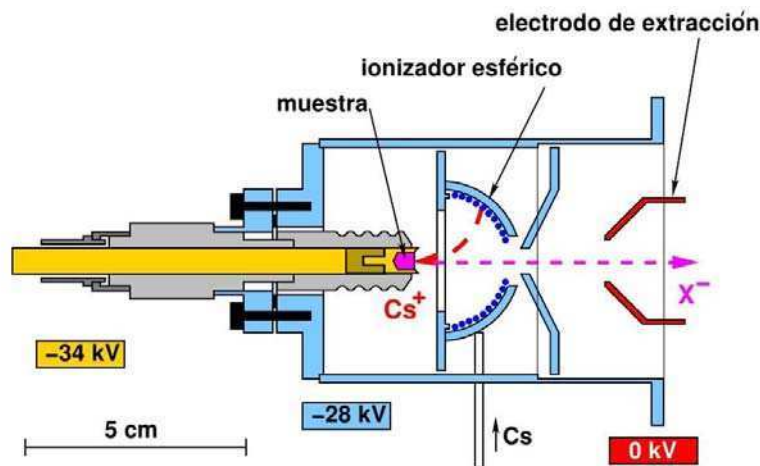
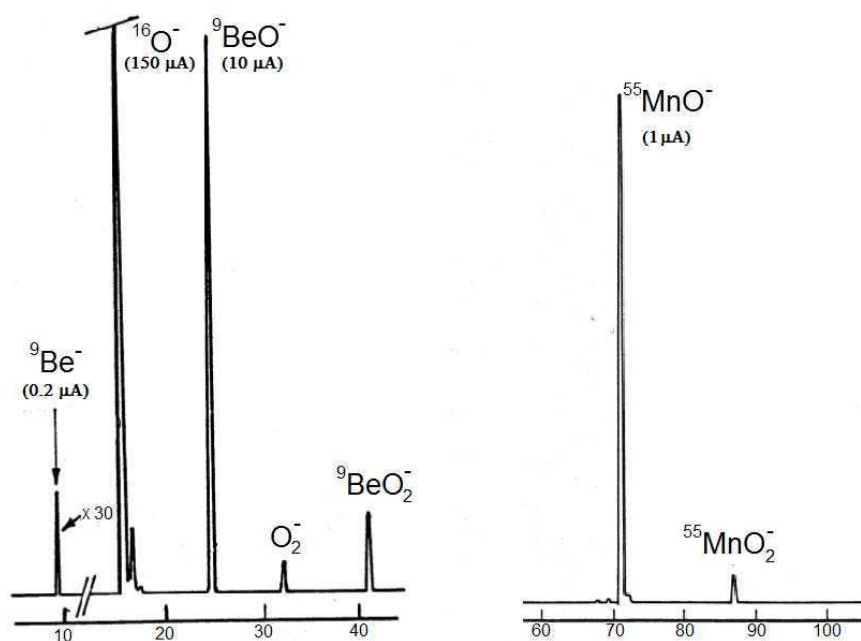


Figura 2.1: Esquema de una fuente de iones negativos.

Dado que la mayoría de los iones que llegan al imán inyector tendrán carga eléctrica ( $q = -e$ ), energía  $E_i$  y deben girar con el radio  $\rho$  propio del imán, el valor del campo magnético de este imán determina la masa del ion sintonizado. La producción de los haces de iones negativos depende fuertemente de la forma química y calidad del material

de la muestra en el cátodo. En algunos casos, no es el anión atómico el que se produce en forma más prolífera sino que conviene oxidar el material y extraer de la fuente de iones un anión molecular. Este es el caso del óxido de berilio ( $\text{BeO}$ ) y óxido de manganeso ( $\text{MnO}_2$ ). Como puede verse en la figura 2.2, la corriente que se espera cuando se extrae el anión  $\text{BeO}^-$  es aproximadamente 50 veces mayor que cuando se lo extrae atómico. Con manganeso, prácticamente no se consigue extraer corriente del anión atómico, sin embargo, se pueden conseguir corrientes aceptables en la forma  $\text{MnO}^-$ . Notar que en particular, se obtiene mayor corriente de  $\text{MnO}^-$  que de  $\text{MnO}_2^-$ , a pesar de ser esta última la molécula presente en el cátodo.

Por otra parte, al rellenar los cátodos porta muestra es necesario mezclar el material a medir con algún polvo conductor (Al, Cu o Ag) para que toda la muestra se encuentre al mismo potencial negativo del cátodo. El polvo conductor actúa también como aglutinante y debe ser mezclado de forma homogénea con la muestra para garantizar la estabilidad de la corriente.



**Figura 2.2:** Corrientes características producidas en la fuente de iones. A la izquierda, con un cátodo que contiene óxido de berilio en polvo. A la derecha, con un cátodo que contiene óxido de manganeso en polvo. Extraído de Middleton (1990).

Una particularidad de las fuentes de iones negativos es que no producen haces de gases nobles o elementos con electronegatividad nula. Esto es una enorme ventaja para la detección de algunos radioisótopos como  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  y  $^{129}\text{I}$ , los cuales no sufren la interferencia de sus respectivos isóbaros:  $^{14}\text{N}$ ,  $^{26}\text{Mg}$ ,  $^{36}\text{Ar}$  y  $^{129}\text{Xe}$ .

## 2.5 Mecanismos de aceleración

La primera etapa de aceleración se debe al potencial del cátodo  $V_c$  y el potencial de extracción  $V_e$  en la fuente de iones. Una vez que los iones doblan en el imán inyector de  $90^\circ$  según describe la ecuación (2.4), en aceleradores grandes (como el acelerador TANDAR (capítulo 9) o el MLL (apéndice C.4), se utiliza una segunda etapa de aceleración ( $V_{pre} \approx 100 - 200$  kV) para ingresar las partículas al tanque de aceleración (ver figura 2.3).

En el tanque de aceleración, la tensión positiva del terminal  $V_T$  acelera las partículas hasta el intercambiador de carga (*stripper*), donde pierden su carga negativa y también un cierto número de electrones atómicos dando lugar a iones con una distribución de estados de carga  $q$  positivos (Schiwietz y Grande, 2001). Además, si el haz extraído de la fuente de iones es molecular, dicha molécula se rompe en este punto.

El *stripper* se encuentra en el terminal de alta tensión (ver figura 2.3) y puede ser gaseoso o sólido. Los iones positivos son luego acelerados en un segundo tramo que tiene lugar entre el terminal y la salida del tanque. Aquí la diferencia de potencial es negativa hacia la salida del tanque (que se encuentra a potencial de tierra) pero los átomos ya cuentan con un estado de carga  $q$  positivo. Se entiende entonces porqué se denomina *tándem* a este tipo de aceleradores: aprovechan un único terminal a alta tensión para acelerar las partículas en dos etapas consecutivas.

Como resultado de estas etapas de aceleración la energía de las partículas se incrementa hasta un valor final  $E$  que puede calcularse a partir de la ecuación (2.5).

$$E = e(V_c + V_e + V_{pre} + V_T) \frac{m_{\text{átomo}}}{m_{\text{molécula}}} + e q V_T \quad (2.5)$$

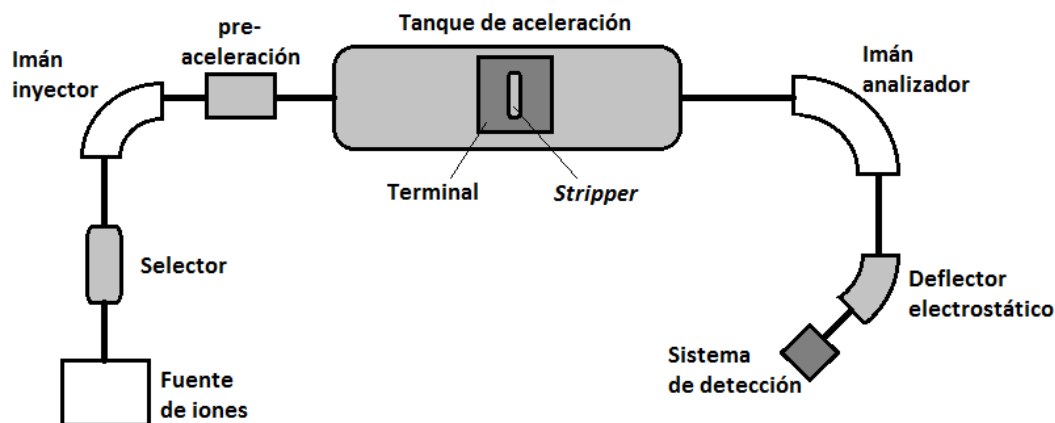


Figura 2.3: Esquema general de una instalación dedicada a AMS.



Luego de las etapas de aceleración, los iones doblan por un imán analizador de  $90^\circ$  dispuesto a la salida del acelerador principal (ver figura 2.3). Nuevamente el cociente  $p/q$  de los iones acelerados deberá ser igual a la rigidez magnética  $B\rho$  prefijada por el imán de acuerdo a la ecuación (2.4). De este modo se seleccionan las partículas que seguirán en la línea del haz hasta llegar a los sistemas de detección. Dichos sistemas serán objeto del capítulo 3.

La gran mayoría de las instalaciones dedicadas a este tipo de mediciones utilizan aceleradores tipo *tandetron* de hasta 3 MV de tensión de terminal. Estas máquinas relativamente pequeñas, tienen la ventaja de ser muy estables (Steier et al., 2004, Müller et al., 2010). Sin embargo, para la discriminación e identificación de núcleos tales como  $^{60}\text{Fe}$ ,  $^{53}\text{Mn}$  son necesarias máquinas de mayor tensión de terminal. En particular, para discriminar átomos de  $^{53}\text{Mn}$  son necesarios al menos 11 MV de tensión de terminal (Knie et al., 2004, Poutivtsev et al., 2010). Las razones por las cuales mayores energías son requeridas en estos casos serán discutidas en la sección 3.5.

## 2.6 Procedimiento de medición

El procedimiento para la determinación de la relación isotópica dependerá de cuan moderna sea la instalación en que se realice la medida, sin embargo, existen lineamientos básicos que se comentan a continuación.

En primer lugar se sintoniza un haz del isótopo estable del radionucleido y se mide su corriente  $I$  en una copa de Faraday cercana al sistema de detección dispuesto para la identificación del radionucleido. Luego, modificando adecuadamente los parámetros del acelerador (esto será diferente en cada instalación) se consigue sintonizar el radionucleido de interés. Este haz resulta invisible para los sistemas de detección del acelerador (BPMs y Copas de Faraday), sin embargo los iones que lo conforman pueden ser identificados y contabilizados individualmente en los sistemas de detección al final de la línea de medición, obteniendo un determinado conteo  $C$  en un dato tiempo  $t$ .

Este procedimiento se realiza tanto con un cátodo con material estándar (de relación isotópica conocida y típicamente entre  $10^{-12}$  y  $10^{-10}$ ) como con el cátodo que porta la muestra (de relación isotópica desconocida). Entre ambas medidas, se coloca un cátodo blanco, esto es, con material portador procesado químicamente del mismo modo que la muestra, como se mencionó en la sección 2.3, para determinar el nivel de fondo.

La relación isotópica medida  $R^{med}$  para cualquiera de estos cátodos se calcula a partir de la expresión dada en (2.6).

$$R^{med} = \frac{C}{(I \cdot 6,24 \times 10^9 / q) \cdot t} \quad , \quad (2.6)$$

donde el denominador corresponde a la cantidad de isótopos estables sintonizados con estado de carga  $q$ , que hubiesen llegado hasta la copa de Faraday durante el tiempo  $t$  dedicado a medir el radionucleido.  $I$  está medido en  $nA$  (nano Ampère) y el factor  $6,24 \times 10^9$  corresponde a la cantidad de cargas elementales por  $nC$  (nano Coulomb).

## 2.7 Funciones del estándar

La medición del estándar cumple esencialmente dos funciones, a saber:

- Identificar las señales del radioisótopo en los espectros obtenidos del sistema de detección y delimitar la zona donde estas señales aparecen, es decir, la región de interés (ROI).
- Determinar el cociente  $T$  entre la eficiencia de detección del radionucleido y la de su isótopo estable.

La primera es fundamental para poder discriminar el radioisótopo de interés de sus interferencias en los espectros adquiridos. La sensibilidad de la técnica para cada radionucleido está drásticamente condicionada por esto último. La segunda, es una condición necesaria para recuperar la relación isotópica *real* en el cátodo, a partir de la relación isotópica *medida* calculada según (2.6).

$T$  es el resultado de que la probabilidad de detectar al radioisótopo en el sistema de detección no es la misma que la de detectar al isótopo estable en una copa de Faraday. De la definición de  $T$  puede verse que, la relación isotópica real en la muestra y la medida se relacionan de forma muy simple:

$$R^{med} = TR^{real} \quad (2.7)$$

donde

$$T = \frac{\text{Eficiencia de detección del radionucleido}}{\text{Eficiencia de detección del isótopo estable}} \quad (2.8)$$

## 2.8 Eficiencia de la técnica

La eficiencia de la técnica de AMS refiere al cociente entre el número de partículas de interés que son detectadas y el número de partículas de interés presentes en la muestra. Durante el proceso de *sputtering* en la fuente de iones (sección 2.4) la gran mayoría de los aniones extraídos del cátodo no se dirigen hacia el imán inyector y sólo una fracción de los radionucleidos de interés presentes en el cátodo llegan hasta esta primera etapa de selección magnética. Además, de aquellos radionucleidos que doblan correctamente por

el imán inyector, una fracción no consigue llegar al final de la línea de medición debido a diferentes procesos que tienen lugar durante el transporte del haz y que se pueden englobar en lo que se conoce como transmisión de todo el sistema de transporte.

Uno de los fenómenos que evita que todas las partículas de interés lleguen al detector es la explosión coulombiana que tiene lugar en el *stripper* cuando el anión seleccionado en el imán inyector es molecular (por ejemplo,  $^{10}\text{BeO}^-$ ,  $^{53}\text{MnO}^-$ ). Cuando la molécula se rompe y cada uno de sus átomos constituyentes pierde electrones por la interacción con el *stripper*, la repulsión electrostática entre los iones que se forman los puede dejar fuera de la línea de transporte del haz. Problemas en la sintonización o alineación de la línea de transporte del haz también pueden ser responsables de la pérdida de partículas de interés. Como resultado de todos estos efectos, aproximadamente uno de cada  $10^4$  -  $10^5$  radionucleidos de interés presentes en el cátodo es detectado durante la medición. Sin embargo, es importante destacar que esta eficiencia implica que la técnica de AMS requiere de tan solo  $\sim 10^6$  átomos del radionucleido de interés presentes en el cátodo colocado en la fuente de iones para detectar  $\sim 100$  de ellos y así poder determinar su relación isotópica con un error estadístico del  $\sim 10$  %.

# 3

## Técnicas para la identificación de partículas

Además de utilizar el mismo tipo de aceleradores que la física nuclear básica, la aplicación de la técnica de AMS supone también la utilización de métodos similares para la identificación y conteo individual de partículas.

En caso de que el nucleido de interés tenga un isóbaro estable, abundante en la naturaleza y del cual se produzcan iones negativos en la fuente de iones, este isóbaro será una fuente de interferencias. Dado que tiene casi la misma masa y la posibilidad de tener el mismo estado de carga que el ion de interés, será sintonizado por el acelerador sin que ninguna combinación de campos magnéticos y eléctricos pueda suprimirlo. Para esto existen esencialmente tres técnicas que pueden ser aplicadas dependiendo de los nucleidos a discriminar y de la energía disponible en cada acelerador:

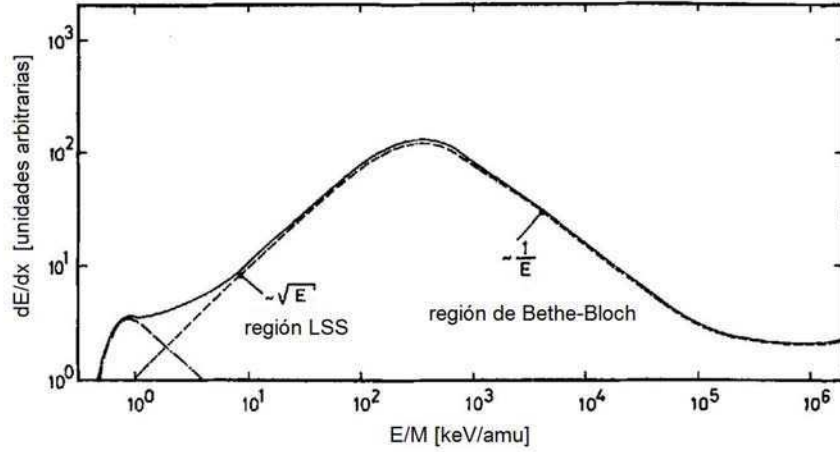
- Frenado parcial y deflexión electrostática.
- Frenado completo del isóbaro.
- Separación en un imán lleno de gas.

Las tres fueron utilizadas en este trabajo, cada una de ellas en una instalación diferente. Su descripción general será dada en las secciones 3.3, 3.4 y 3.5.

### 3.1 Interacción de iones con la materia

Los sistemas de detección diseñados para la identificación de partículas capitalizan las diferentes formas en que estas pierden energía al interactuar con la materia. Dicha pérdida depende fuertemente del número de protones de la partícula, pero también de su masa y energía.

En la figura 3.1 se presenta un gráfico del poder de frenado en función de la energía cinética por unidad de masa de las partículas. Se evidencian dos zonas de comportamiento diferente que pueden delimitarse por la condición  $v = v_0 Z^{2/3}$ , donde  $v_0 = 2,19 \times 10^6$  m/s es la velocidad de Bohr (Schmidt-Böcking, 1978), y  $Z$  el número atómico de la partícula.



**Figura 3.1:** Poder de frenado medio de las partículas al interactuar con la materia en función de su energía cinética  $E$  por unidad de masa atómica. Línea sólida: poder de frenado total; línea a trazos: poder de frenado electrónico; línea a trazos y puntos: contribución nuclear. LSS: Modelo de Lindhard y Scharff. Extraído de Schmidt-Böcking (1978).

A bajas velocidades ( $v < v_0 Z^{2/3}$ ), las partículas interactúan con las capas externas de electrones. En estas condiciones, el modelo de Lindhard y Scharff (LSS) describe correctamente la interacción y puede resumirse en la expresión (3.1).

$$\frac{dE}{dx} = Z^{1/6} 8\pi e^2 a_0 \frac{Z Z_n}{(Z^{2/3} + Z_n^{2/3})^{3/2}} = K v \propto \sqrt{E} \quad (3.1)$$

donde  $Z_n$  es la carga nuclear de los átomos blanco y  $a_0$  el radio de Bohr.

A altas velocidades ( $v > v_0 Z^{2/3}$ ), un modelo semiempírico adecuado es el de Bethe-Bloch (Bethe y Ashkin, 1953) que se presenta en la ecuación (3.2).

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi}{m_e C^2} \frac{n z^2}{\beta^2} \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon}\right)^2 \left[ \ln\left(\frac{2m_e C^2 \beta^2}{I(1-\beta^2)}\right) - \beta^2 \right] \quad (3.2)$$

donde  $m_e$  es la masa del electrón,  $e$  su carga y  $n$  su densidad en el blanco;  $C$  la velocidad de la luz,  $\epsilon$  la permitividad dieléctrica del vacío,  $I$  el potencial medio de excitación y  $\beta = v/C$ .

Para un mismo material, despreciando los efectos relativistas y la dependencia funcional del logaritmo, se obtiene que

$$\frac{dE}{dx} \propto \frac{AZ^2}{E}, \quad (3.3)$$

donde  $A$  y  $Z$  son los números másico y atómico de la partícula incidente respectivamente, y  $E$  su energía.

Resulta entonces que la energía perdida por unidad de longitud penetrada en este rango de energías es proporcional al cuadrado del número de protones  $Z$  e inversamente proporcional a su energía  $E$ , mientras que, en el rango de bajas energías, la pérdida es proporcional tanto a  $Z$  como a  $\sqrt{E}$ .

## 3.2 Identificación con cámara de ionización

Las cámaras de ionización con ánodo segmentado son detectores gaseosos donde pueden medirse tanto la energía total como la pérdida parcial de energía de las partículas al interactuar con la materia. De este modo es posible identificarlas según su número atómico  $Z$ .

Estos detectores consisten básicamente en un volumen con gas en el que se genera un campo eléctrico, típicamente a partir de dos placas paralelas sometidas a una diferencia de potencial (Knoll, 2000). Cuando una partícula con energía suficiente ingresa en este volumen, ioniza las moléculas del gas creando un par catión-electrón que, en presencia de un campo eléctrico, son acelerados hasta el cátodo y ánodo respectivamente. La colección de los electrones generados constituye una señal (más rápida que la de los iones pesados) cuya altura es proporcional a la energía de las partículas que ionizaron el gas. De este modo es posible determinar la energía que las partículas cargadas transfirieron al gas. El gas típicamente utilizado en este tipo de detectores se conoce como P-10 y está formado por una mezcla de 90 % de argón y 10 % de metano.

Si además el ánodo es segmentado, es posible coleccionar la carga generada en cada tramo de la cámara de ionización conociendo de este modo, las sucesivas pérdidas parciales de energía que tienen las partículas al interactuar con el gas hasta detenerse.

## 3.3 Frenado parcial y deflexión electrostática de pares isobáricos livianos

Esta técnica consiste en interponer una delgada folia de nitruro de silicio ( $\text{Si}_3\text{Ni}_4$ ) en el camino del haz ( $0,1 - 1 \mu\text{m}$ , dependiendo de la energía de las partículas), justo antes de un deflector electrostático. De esta forma, debido a que el  $^{10}\text{B}$  posee un protón más que el  $^{10}\text{Be}$ , tanto a bajas (ecuación (3.1)) como altas energías (ecuación (3.3)) el  $^{10}\text{B}$  perderá mayor energía que el  $^{10}\text{Be}$ .

Un deflector electrostático consiste básicamente en un par de placas paralelas curvadas con un determinado radio de giro que sometidas a una diferencia de potencial generan un campo eléctrico  $\epsilon$  en su interior. Cuando las partículas con estado de carga  $q$  ingresan en él, la fuerza ejercida por el campo eléctrico curva sus trayectorias con un radio de giro  $\rho$

descrito por la siguiente expresión:

$$\epsilon \rho = \frac{2E}{q}$$

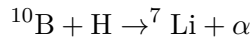
donde  $\epsilon \rho$  es la rigidez eléctrica que deben tener las partículas para superar con éxito la condición impuesta por este elemento óptico, y  $E$  su energía cinética.

Ajustando entonces la rigidez eléctrica del deflector electrostático a la del  $^{10}\text{Be}$ , este consigue doblar correctamente mientras que el  $^{10}\text{B}$  lo hace con un radio de giro ligeramente inferior (debido a que tiene menor energía). Con la imposición de una pequeña apertura a la salida del deflector es posible reducir hasta en un 80 % la presencia de  $^{10}\text{B}$ . El 20 % restante consigue llegar hasta el detector ubicado al final de la línea, típicamente una cámara de ionización. Haciendo nuevamente uso de la diferencia en el número de protones y que además, el  $^{10}\text{B}$  llega con menor energía, se lo consigue discriminar en espectros bidimensionales donde se gráfica la energía total  $E$  perdida en el detector en función de la pérdida de energía  $\Delta E$  en alguna de las etapas de la cámara de ionización.

### 3.4 Frenado completo del isóbaro que interfiere

En aceleradores cuya tensión de terminal supera los  $\sim 6$  MV es posible proveer a las partículas energía suficiente ( $E > 20$  MeV) como para detener completamente el  $^{10}\text{B}$  y que el  $^{10}\text{Be}$  aún cuente con energía remanente para su correcta detección ( $E > 1$  MeV). Notar que este método sólo puede aplicarse cuando la interferencia posea un  $Z$  mayor que el radionucleido de interés.

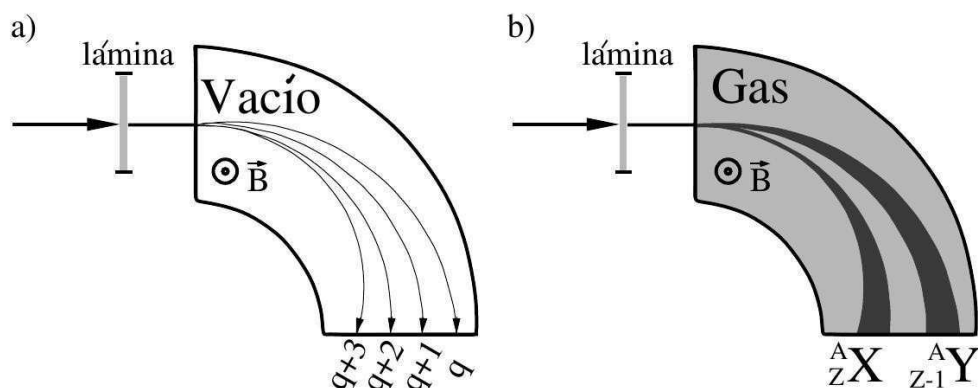
Para ello se interpone en el camino del haz un absorbente pasivo mucho más grueso que el utilizado antes de un deflector electrostático. Si bien podría tratarse de folias de nitruro de silicio de algunos micrómetros de espesor, también puede utilizarse una cámara con gas. Deben tenerse en cuenta algunos cuidados a la hora de construir este tipo de absorbentes pasivos, ya que ni el material de las ventanas que confinan el gas ni el mismo gas deben contener hidrógeno, pues esto podría dar lugar a la reacción nuclear:



Por ello suele utilizarse gas Ar o He y en las ventanas una aleación metálica no magnética conocida como Havar (Co: 42,5 %, Cr: 20 %, Ni: 13 % y en menores proporciones Fe, W, Mo y Mn).

### 3.5 Separación de pares isobáricos pesados en un imán lleno de gas

Cuando la diferencia relativa en el número de protones es pequeña, los dos métodos anteriores de supresión del isóbaro no son suficientes para conseguir la discriminación.



**Figura 3.2:** Esquema de las trayectorias seguidas por partículas cargadas en presencia de campo magnético: (a) en vacío, los distintos estados de carga que se producen al atravesar la lámina siguen trayectorias definidas e idénticas para los isóbaros; (b) lleno con gas, los iones alcanzan un estado de carga promedio.

Por ejemplo, no es posible discriminar  ${}^{53}\text{Mn}$  de  ${}^{53}\text{Cr}$  ni con un deflector electrostático, ni por supresión total del  ${}^{53}\text{Cr}$ . En el primer caso porque la diferencia en el radio de giro sería insignificante y en el segundo porque el  ${}^{53}\text{Cr}$  ( $Z = 24$ ) posee un protón menos que el  ${}^{53}\text{Mn}$  ( $Z = 25$ ). Cabe aclarar que aunque la situación fuese inversa (interferencia isobárica con mayor  $Z$  que el radionucleido), de todos modos la discriminación no sería posible por supresión completa del isóbaro ya que el radionucleido quedaría prácticamente sin energía en este caso. Notar que  $\Delta Z/Z = 1/24$ .

En estas condiciones, la técnica del imán lleno de Gas o GFM (*Gas Filled Magnet*) es la única adecuada (Fulmer y Cohen, 1958). Esta técnica consiste en llenar con gas a baja presión ( $\sim 10$  mbar de  $\text{N}_2$ ) un espectrómetro magnético instalado al final de la línea, y por lo tanto después del imán analizador. Conforme las partículas atraviesan el volumen de gas realizan intercambios de carga en las sucesivas interacciones con átomos. Luego de un mínimo número de interacciones ( $\geq 10^4$ ) logran un estado de carga medio  $q$  alrededor del cual fluctúan a lo largo de su trayectoria. Para partículas en el rango de velocidad  $1 < v/v_0 < Z^{2/3}$  (donde  $v_0$  es la velocidad de Bohr), el valor de  $q$  a primer orden está dado por:  $q = v/Z^\alpha$ , con  $\alpha \sim 0,4$  (Betz, 1972), es decir, es función del número de protones de la partícula incidente. Ahora bien, como el radio de giro efectivo depende de  $q$ , también dependerá de  $Z$ , de modo que dos isóbaros X e Y tendrán diferente radio de giro dentro del imán (ver figura 3.2). Es importante notar que en vacío, los diferentes estados de carga de los iones tendrían diferentes radios de giro mientras que gracias a la presencia de gas dentro del imán, todas las partículas con un mismo  $Z$  tienen un mismo radio de giro medio  $\rho$ . Las fluctuaciones alrededor del radio medio producen puntos de impacto más difusos pero que permiten la separación de los isóbaros.



## 3.6 Interferencias isotópicas

Otras posibles interferencias son las que provocan isótopos estables que superan la selección en masa del imán inyector. En el caso de isótopos de menor masa que el de interés, esto ocurre debido a iones moleculares cuya masa iguala a la del ion de interés. En el caso de isótopos con masas mayores, su paso por el imán inyector puede deberse a caídas transitorias de las tensiones de la fuente de iones o a la dispersión en energía de los haces que produce. En ambos casos estos isótopos ingresan al acelerador con mucha mayor frecuencia que el nucleido de interés. Ya en el sector de alta energía del acelerador pueden sufrir una colisión con una molécula del gas residual. En esta colisión puede perder más electrones, aumentando su estado de carga. Dependiendo de la posición en que ocurre este intercambio y del nuevo estado de carga adquirido, puede resultar con la rigidez magnética necesaria para ser aceptado por el imán analizador. Se volverán a tratar este tipo de interferencias en la sección 9.4.

**Tiempo de Vuelo** Esta es una técnica apropiada para la discriminación de isótopos que interfieren y es utilizada por ejemplo para discriminar  $^{129}\text{I}$  de su isótopo estable  $^{127}\text{I}$  o bien  $^{236}\text{U}$  de  $^{238}\text{U}$ . Este método explota el hecho de que partículas con diferente masa  $m$  pero igual momento  $p$  requieren tiempos de vuelo diferentes para recorrer una misma distancia  $d$ . Sabiendo que el isótopo de mayor masa viajará más lento  $v = p/m$ , se lo identifica luego por demorar más en recorrer la misma distancia.

**Filtro de Wien** También es posible suprimir drásticamente las interferencias isotópicas con el uso de un filtro de velocidades o Filtro de Wien. Este elemento óptico genera un campo eléctrico y un campo magnético perpendiculares entre sí. Ajustando la relación entre dichos campos puede seleccionarse la velocidad  $v_0$  de las partículas que pasan a través de él sin ser desviadas ( $v_0 = -E/B$ ). Es decir, bajo esta condición, la fuerza que ejerce cada campo sobre los iones se compensa. De este modo, partículas con velocidades mayores o menores que  $v_0$  son desviadas de la trayectoria del haz, evitando de este modo que lleguen al detector. De las instalaciones utilizadas en este trabajo, tanto el acelerador VERA (apéndice C.2) como el del *Maier Leibnitz Laboratorium* (apéndice C.4) cuentan con Filtros de Wien.

Parte II

Aplicaciones geológicas



Durante la subducción de una placa oceánica por debajo de una placa continental, diferentes fenómenos pueden tener lugar en la capa de sedimentos acumulados sobre ellas debido a los esfuerzos de compresión involucrados. Pueden producirse fallas y/o pliegues, y los sedimentos pueden ser acretados contra la placa continental o pueden ser subducidos junto con la placa oceánica. En este último caso, una fracción del material subducido puede ser incorporado a los magmas que se generan por fusión parcial en el manto por debajo del borde continental. El reciclado de material finaliza cuando los magmas se intruyen a lo largo del arco, o bien regresan a la superficie al ser eruptados en forma de rocas volcánicas.

La observación de  $^{10}\text{Be}$  en rocas volcánicas en el orden de los millones de átomos por gramo, resultó ser una fuerte evidencia de que los sedimentos submarinos (ricos en  $^{10}\text{Be}$ ) se reciclan durante la subducción de placas tectónicas (Tera et al., 1986, Morris y Tera, 1989). Esto se concluye del hecho de que este radionucleido no puede provenir del manto terrestre, pues el material que lo conforma es lo suficientemente antiguo, en comparación con el período de semidesintegración del  $^{10}\text{Be}$  ( $T_{1/2} \sim 1,4 \times 10^6$  a), como para que este último haya decaído completamente.

En esta parte de la tesis se estudiaron, en primer lugar, aspectos de la dinámica de los sedimentos submarinos acretados, para lo cual se determinó la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en 14 muestras de hasta 250 metros de profundidad utilizando la técnica de AMS. En segundo lugar, a partir de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en los sedimentos y en cenizas y rocas volcánicas de cuatro volcanes de la Cordillera de los Andes, se estudió la participación de los sedimentos submarinos subducidos en la conformación de los magmas extruidos.



# 4

## Dinámica de sedimentos submarinos

En este capítulo se presenta el estudio realizado sobre determinados aspectos de la dinámica de los sedimentos submarinos acretados sobre la placa continental utilizando el  $^{10}\text{Be}$  para su datación. Se estudian los efectos de corrientes turbidíticas, y fallas inversas, se cuantifica la tasa de sedimentación y el inventario de  $^{10}\text{Be}$  en el Punto Triple de Chile. También se evalúa la utilidad del radionucleido  $^{53}\text{Mn}$  como trazador del proceso de reciclado de sedimentos.

### 4.1 Escenario geológico

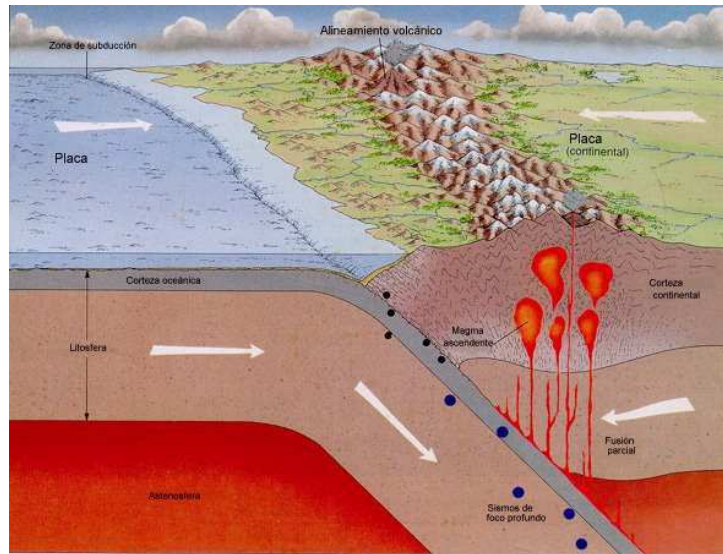
El escenario en esta zona de subducción es realmente complejo, y para señalarlo basta decir que no sólo placas tectónicas (Nazca y Antártica) subducen debajo de la placa Sudamericana (figura 4.1), sino que además lo hace la Dorsal de Chile.<sup>1</sup>

Debido al esfuerzo que una placa tectónica ejerce sobre la otra, la región del antearco comprendida entre la fosa oceánica y el cordón volcánico, sufre grandes terremotos (Behrmann et al., 1994, Behrmann y Kopf, 2001). Un fenómeno asociado a dichos terremotos, en lo que refiere a la dinámica de los sedimentos submarinos, es el de corrientes turbidíticas (figura 4.2). Se trata de avalanchas submarinas que pueden llevar por gravedad grandes cantidades de sedimento de una región a otra. La ocurrencia de este fenómeno de resedimentación puede identificarse mediante un estudio litoestratigráfico de los sedimentos en busca de turbiditas.

Otros fenómenos de importancia en la dinámica de los sedimentos submarinos son la formación de fallas y pliegues. Cuando esto sucede, diferentes capas de sedimentos pueden ser apiladas en un orden diferente al que fueron depositadas, dando lugar por ejemplo, a la aparición de sedimentos jóvenes debajo de columnas de sedimentos más antiguos como se muestra en la figura 4.3.

---

<sup>1</sup>Dorsal oceánica que se desprende de la gran dorsal del Pacífico Oriental, en la misma región en que comienza la dorsal de Nazca.



**Figura 4.1:** Subducción de una placa oceánica por debajo de una placa continental. Figura adaptada de U.S. Geological Survey.

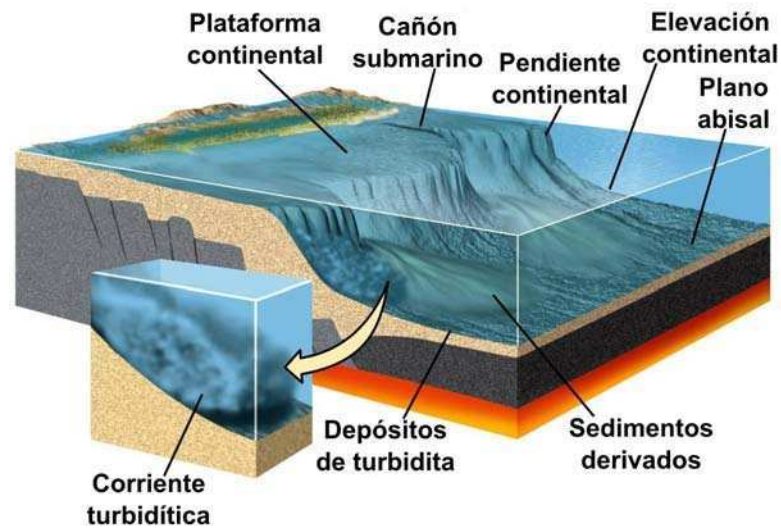
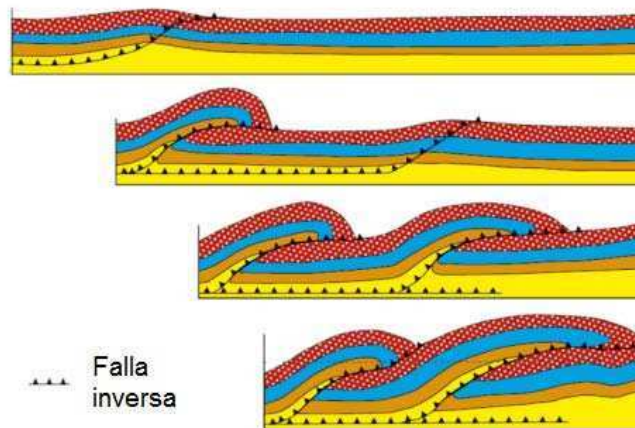


Figure 20.19a  
Understanding Earth, Sixth Edition  
© 2010 W. H. Freeman and Company

**Figura 4.2:** Esquema representativo de la forma en que las corrientes turbidíticas transportan sedimentos. Adaptado de la figura 2019.a de *Understanding Earth, Sixth Edition 2010 W. H. Freeman and Company*.



**Figura 4.3:** Esquema representativo de la forma en que ocurren las fallas inversas produciendo un imbricado perfil de capas con edades alternadas. Adaptado de Pedersen (2014).

## 4.2 Radiotrazadores

El  $^{10}\text{Be}$  producido en la atmósfera (sección 1.1) llega a la superficie terrestre principalmente a través de las precipitaciones. En particular, el  $^{10}\text{Be}$  se deposita en los sedimentos submarinos, donde puede arribar por precipitaciones sobre el mar o bien, junto con los sedimentos transportados por los ríos. Su relación isotópica (respecto de su isótopo estable  $^9\text{Be}$ ) en sedimentos submarinos fue estudiada por Bourles et al. (1989) con intenciones de evaluar su potencial para datación. Ellos encontraron que la relación isotópica en la fracción autigénica<sup>2</sup> del grupo de sedimentos estudiados presentaba menor dispersión que la relación isotópica total:  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}_{\text{autigénico}} = 8,5 \times 10^{-8}$  ( $\sim 22\%$ ) y  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}_{\text{total}} = 5,4 \times 10^{-8}$  (31%), razón por la cual concluyeron que la fracción autigénica es la más adecuada para datación.

El  $^{10}\text{Be}$  fue ampliamente utilizado como trazador del proceso de subducción (Tera et al., 1986, Sigmarsson et al., 1990). Sin embargo, la mayoría de los trabajos no determinaron el inventario de  $^{10}\text{Be}$  en los sedimentos subducidos en la zona de estudio sino que lo estimaron utilizando su producción atmosférica y posterior depositación. Otros usaron directamente el valor medio de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos de otras regiones (Morris et al., 1990). Actualmente, gracias a las muestras recolectadas por el *Ocean Drilling Program* (ODP) durante los últimos veinticinco años es posible realizar mediciones directas de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos submarinos extraídos a más de mil metros de profundidad por debajo del fondo marino.

<sup>2</sup>La fracción autigénica es aquella que se encuentra compuesta por especies precipitadas y adsorbidas de la fase soluble del agua del océano.



El  $^{53}\text{Mn}$  posee un período de semidesintegración de  $T_{1/2} = (3,7 \pm 0,4) \times 10^6$  a, prácticamente el mismo tiempo que le toma a los átomos del sedimento cumplir su ciclo de reciclado<sup>3</sup>  $(3,5 \pm 0,7) \times 10^6$  a, con lo cual, se espera que aproximadamente la mitad de los núcleos de  $^{53}\text{Mn}$  presentes en los sedimentos decaigan durante su tiempo de tránsito hasta los volcanes. En este sentido, el  $^{53}\text{Mn}$  parece ser incluso más adecuado que el  $^{10}\text{Be}$ , sin embargo, su concentración en sedimentos fue reportada previamente en valores cercanos a los límites de detección de la técnica de AMS para este radionucleido ( $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} \sim 10^{-14}$ , Poutivtsev et al. (2010)).

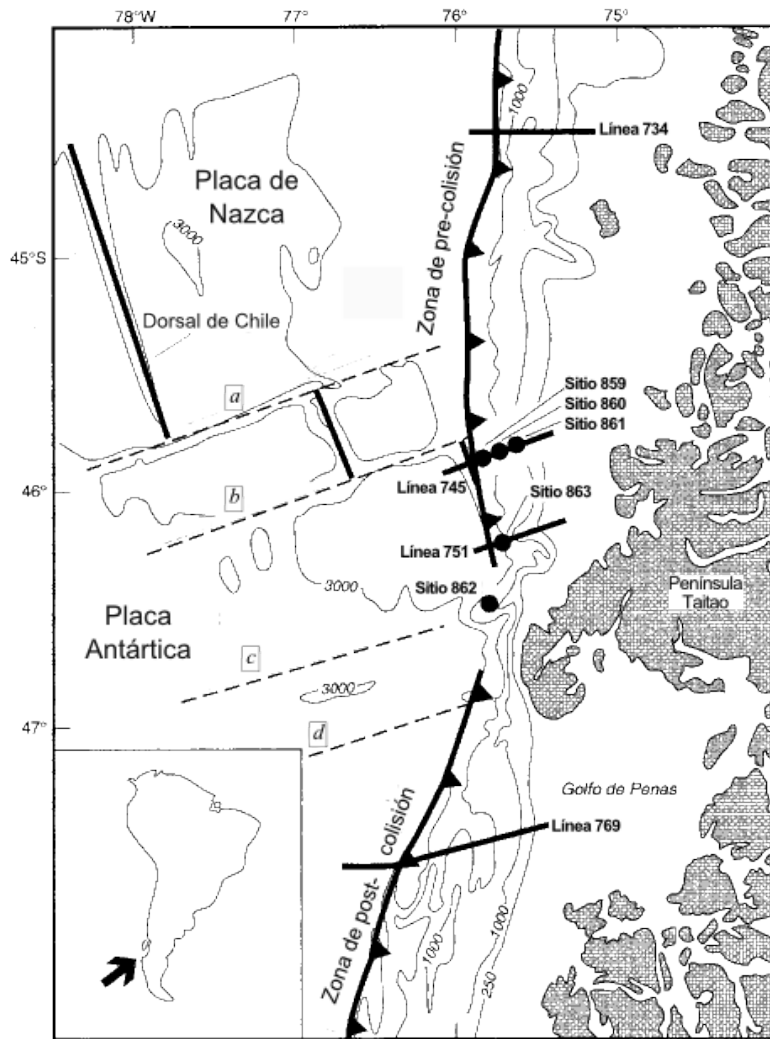
En lo que se refiere a sus características geoquímicas, el manganeso pertenece al grupo de elementos llamados compatibles. Así se espera que la mayor parte del manganeso subducido y luego incorporado a los magmas permanezca en la astenósfera donde resultaría isotópicamente diluido por la presencia de  $^{55}\text{Mn}$ . De esta forma, su concentración en los magmas que asciendan y puedan llegar a formar rocas volcánicas se vería fuertemente disminuida, hasta encontrarse por debajo de los límites de detección de la técnica. Esto último no sucede con el  $^{10}\text{Be}$  porque su comportamiento geoquímico es incompatible, razón por la cual el material fundido se enriquece en Be a medida que avanza la cristalización de un magma.

### 4.3 Sedimentos submarinos

Para realizar este trabajo se utilizaron 14 muestras de sedimentos submarinos extraídos de los primeros 250 metros de la perforación realizada por el ODP en el Sitio 860. Dicho lugar de muestreo se ubica en el Punto Triple de Chile a  $45^{\circ}53'$  latitud sur y  $75^{\circ}45'$  longitud oeste (figura 4.4), y es uno de los tres más cercanos al volcán Hudson de los explorados por este programa. La perforación realizada extrajo sedimentos de hasta 618 metros por debajo del fondo submarino, que según la datación con microfósiles corresponden al Plioceno temprano (Behrmann et al., 1992). El fondo marino en el lugar de muestreo se encontraba a 2146 metros bajo el nivel del mar.

Los sedimentos de los Sitios 859, 860 y 861 (figura 4.4) fueron exhaustivamente estudiados y caracterizados por Behrmann y colaboradores (Behrmann et al., 1992, 1994, Spiegler et al., 1995, Locker, 1995, Spiegler y Musgrave, 1995, Behrmann y Kopf, 2001, Kilian y Behrmann, 2003). Un resumen de los principales resultados reportados sobre la litoestratigrafía, bioestratigrafía y tasa de sedimentación de las muestras se presentan en la apéndice D.

<sup>3</sup>En la sección 5.2.1 se calcula este valor a partir de la velocidad de la placa y la longitud del canal de subducción.



**Figura 4.4:** Mapa del área del Punto Triple de Chile donde se indican las zonas pre y post colisión entre la Dorsal de Chile y la placa continental. También se indica la ubicación de los Sitios 859 a 863 del ODP y las líneas sísmicas 734, 745, 751 y 769. Extraído de Behrmann y Kopf (2001).

## 4.4 Procesamiento químico de las muestras

En esta sección se describirán los procedimientos químicos realizados para extraer los átomos de Be y Mn presentes en las muestras. También se mencionan las técnicas utilizadas para suprimir químicamente la presencia de B y Cr reduciendo así las interferencias provocadas por  $^{10}\text{B}$  y  $^{53}\text{Cr}$  durante las mediciones por la técnica de AMS de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{53}\text{Mn}$  respectivamente (razones dadas en el capítulo 3).

### 4.4.1 Lixiviación de la fracción autigénica

Como se mencionó en la sección 4.2, la fracción autigénica, formada por procesos de diagénesis<sup>4</sup> es la más adecuada para datación. El Be presente en la fracción autigénica se incorporó a los sedimentos encontrándose este *in situ* y permanece por lo tanto en la parte superficial de los granos que lo constituyen. La fracción no autigénica en cambio, corresponde a la parte interior de los granos que conforman los sedimentos y contiene los átomos de Be que fueron transportados por el sedimento desde el continente.

La extracción de la fracción autigénica de las muestras se realizó a través de un procedimiento de lixiviación<sup>5</sup> desarrollado originalmente por Bourles et al. (1989), adaptado luego por Merchel y Herpers (1999) y recientemente empleado en el trabajo de Feige et al. (2013). Este procedimiento consiste básicamente en la lixiviación de 3 g de muestra en 60 ml de ácido acético a una temperatura de 90 °C con agitador durante 8 hs. De este modo, aproximadamente el 10 % de la fracción externa de cada grano de sedimento es llevada a solución. Para una descripción detallada del procedimiento ver el apéndice B.1.

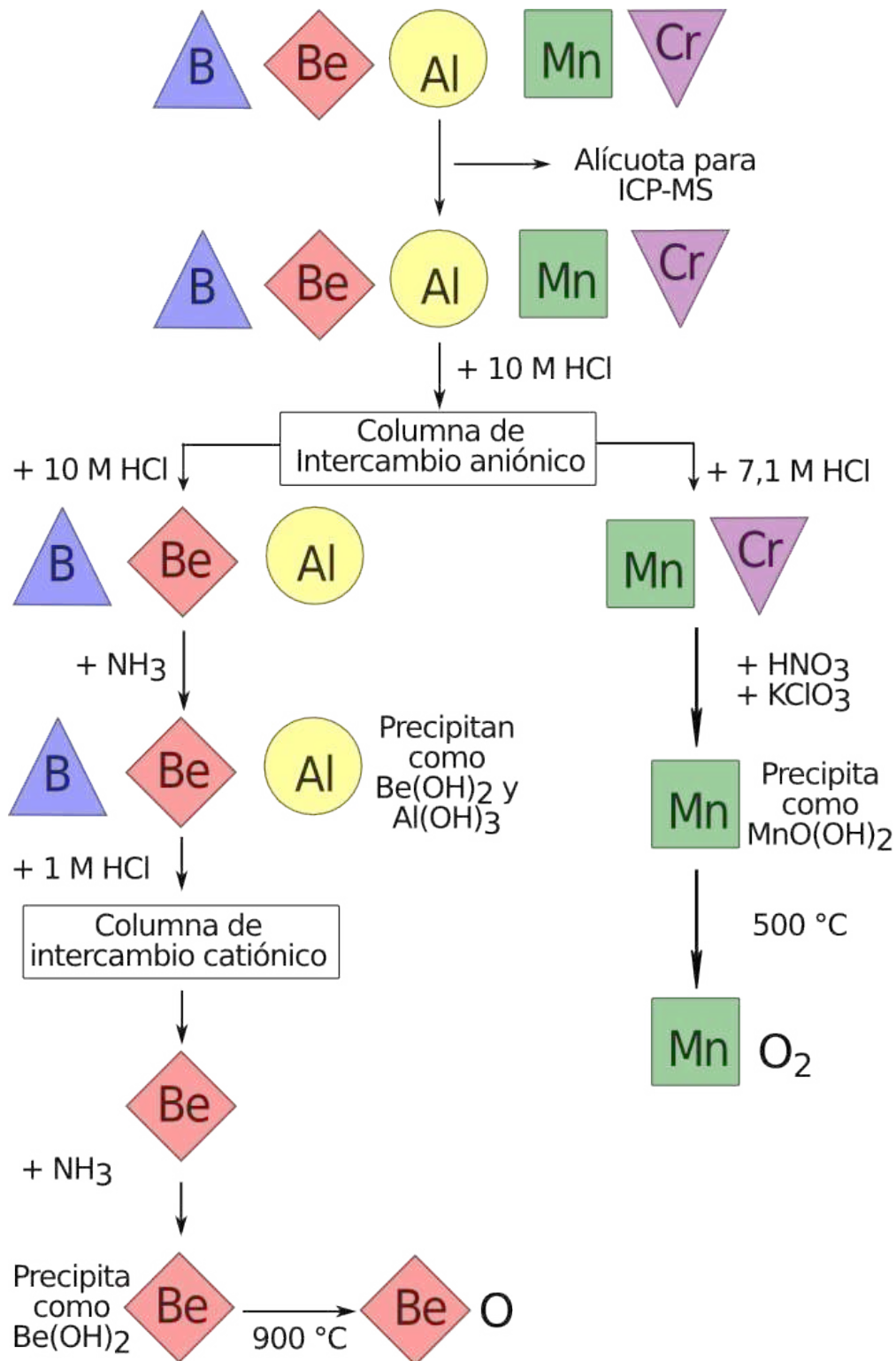
### 4.4.2 Extracción del Be y Mn con supresión de B y Cr

Debido a la baja concentración de Be en los sedimentos ( $\sim 2$  ppm), para poder separar el Be presente en la solución que resultó de la lixiviación, fue necesario agregar a las muestras entre 300 - 500  $\mu\text{g}$  de Be de relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (3,3 \pm 0,6) \times 10^{-15}$  (Schrlab,  $\text{BeCl}_2$  en  $\text{HCl}$  2 %) en calidad de material portador.

En el esquema de la figura 4.5 se presenta un diagrama de flujo simplificado del procedimiento llevado a cabo para obtener  $\text{BeO}$  y  $\text{MnO}_2$ . La extracción del Be y Mn presente en las fracciones autigénicas lixiviadas, así como la supresión química de sus isóbaros ( $^{10}\text{B}$  en las de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{53}\text{Cr}$  en las de  $^{53}\text{Mn}$ ) se consiguió utilizando columnas de intercambio con resinas aniónicas y catiónicas específicas para retener estos elementos.

<sup>4</sup>Diagénesis: formación de una roca sedimentaria a partir de sedimentos sueltos que sufren un proceso de compactación y cementación

<sup>5</sup>Lixiviación: extracción de la materia soluble de una mezcla mediante la acción de un disolvente líquido.



**Figura 4.5:** Diagrama de flujo simplificado del procedimiento químico utilizado para la extracción de Be y Mn con la supresión de sus respectivos isóbaros. Adaptado de Merchel y Herpers (1999).

De este modo, los cationes de Be y Mn fueron retenidos en las resinas y eluidos luego con el agregado de una solución ácida de concentración adecuada. Mediante una columna de intercambio aniónico fue posible separar los átomos de Mn (con una fracción de los átomos de Cr) de los átomos de Be, Al y otros elementos presentes en la muestra. En una instancia posterior, utilizando una columna de intercambio catiónico, fue posible separar el Be del Al. En este último paso tuvo lugar además la supresión química del B.

Para mejorar la supresión química del Cr, que se logra con la columna de intercambio aniónico utilizada para separar el Mn, se realizaron tres precipitaciones consecutivas de la solución con Mn utilizando  $\text{KClO}_3$ . Para una descripción detallada del procedimiento ver el apéndice B.2.

El BeO obtenido al final de este procedimiento se mezcló en proporción 1:8 con polvo de Nb, y tras homogeneizarlo mecánicamente en un mortero, se prensó en los cátodos de Al que serían luego colocados en la fuente de iones del acelerador DREAMS (Akhmadaliev et al., 2013). El  $\text{MnO}_2$  se mezcló en proporción 1:1 con polvo de Ag y tras homogeneizarlo mecánicamente, se prensó en cátodos de Ag que serían luego colocados en la fuente de iones del acelerador del *Maier-Leibnitz-Laboratorium* (MLL) (Knie et al., 2000). Tanto el polvo de Ag utilizado como aglutinante, como la Ag con que fueron construidos los cátodos, posee una concentración de Cr menor a 10 ppb a fin de evitar la interferencia que  $^{53}\text{Cr}$  podría introducir durante las mediciones.

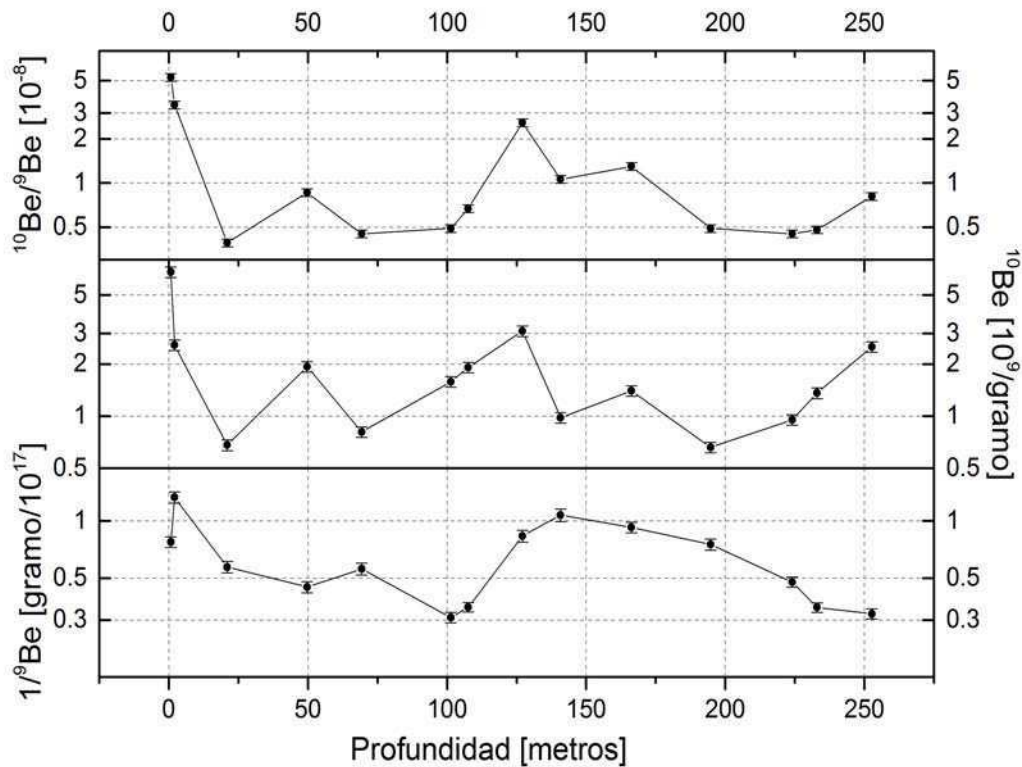
## 4.5 Resultados experimentales

En esta sección se presentan los resultados obtenidos al determinar, mediante la técnica de AMS, la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en las 14 muestras de sedimentos submarinos con el acelerador DREAMS, en Dresden, Alemania, y la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  en cuatro de ellas utilizando el acelerador del MLL en Munich, Alemania.

### 4.5.1 Mediciones de la relación isotópica $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$

Para determinar la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  se utilizó la instalación DREAMS. Se trata de un acelerador de 6 MV de tensión de terminal, donde la técnica utilizada para discriminar  $^{10}\text{Be}$  de  $^{10}\text{B}$  es la de frenado parcial y deflexión electrostática (sección 3.3). Para conocer los detalles técnicos de esta instalación ver el apéndice C.3.

Con la concentración de  $^9\text{Be}$  en la fracción autigénica de cada muestra determinada por la técnica de ICP-MS y la relación isotópica medida por AMS fue posible determinar la relación isotópica original en la muestra y la concentración de  $^{10}\text{Be}$  y  $^9\text{Be}$  por gramo de material lixiviado (Rodrigues et al., 2016a). Los detalles de los cálculos realizados pueden encontrarse en el apéndice A. Los resultados, acompañados de la profundidad de cada muestra, se presentan en la tabla 4.2 y se grafican en la figura 4.6.



**Figura 4.6:** Gráfico de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y la concentración de  $^{10}\text{Be}$  por gramo en la fracción autígenica de los sedimentos estudiados. También se grafica la inversa de la concentración de  $^9\text{Be}$ .

Como puede verse, el perfil de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  está fuertemente determinado por la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . Por otra parte, es importante notar que las variaciones en el factor  $1/^9\text{Be}$  son al menos tres veces menores que las variaciones en la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . En la sección 4.6 se buscará una posible interpretación para este perfil.

#### 4.5.2 Mediciones de la relación isotópica $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$

Las mediciones de la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  se llevaron a cabo con el acelerador de 14 MV del laboratorio MLL donde se utilizó el sistema GAMS (Knie et al., 1997) para la aplicación de la técnica de separación por medio de un imán lleno de gas descripta en la sección 3.5. En la sección 6.5.1 se darán mayores detalles sobre este tipo de mediciones. Los resultados se presentan en la tabla 4.1.

Como puede observarse, los valores obtenidos para las muestras ODP 017X, ODP 010X y ODP 029X son compatibles con cero y como resultado de la medición se informa

sólo una cota superior correspondiente a un intervalo del 68 % de nivel de confianza según la estadística propuesta por Feldman y Cousins (1998). Sólo la muestra ODP 022X permitió establecer un límite inferior para la relación isotópica de  $3,3 \times 10^{-14}$ .

**Tabla 4.1:** Relaciones isotópicas  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  correspondientes a cuatro muestras de sedimentos submarinos. Se presenta además el nivel de blanco químico alcanzado durante las mediciones.

Muestra	$^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$	+	-
Blanco químico	$1,2 \times 10^{-14}$	$0,9 \times 10^{-14}$	$0,7 \times 10^{-14}$
ODP 017X	0	$1,3 \times 10^{-12}$	0
ODP 010X	0	$1,6 \times 10^{-12}$	0
ODP 022X	$1,3 \times 10^{-13}$	$1,6 \times 10^{-13}$	$0,9 \times 10^{-13}$
ODP 029X	0	$1,5 \times 10^{-12}$	0

En todos los casos, a pesar de no haber sido necesario el agregado de material portador para la extracción química del Mn, se obtuvieron valores compatibles con cero o muy cercanos al límite de detección. El nivel de sensibilidad alcanzado es el informado como blanco químico en tabla 4.1.

Este resultado descarta la posibilidad de utilizar  $^{53}\text{Mn}$  como trazador en este sistema ya que, luego de la dilución que sufre durante la subducción, la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  en muestras volcánicas resultarán por debajo del límite de detección de la técnica para este radionucleido. Más aún, considerando que el Mn es un elemento con comportamiento geoquímico compatible y la concentración de manganeso en los magmas del manto es  $\sim 1 - 2$  ppm (Lyubetskaya y Korenaga, 2007).

**Tabla 4.2:** Relaciones isotópicas  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  medidas y originales en la fracción autigénica de las muestras estudiadas.

Muestra	Profundidad [metros]	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ medido [ $10^{-11}$ ]	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ original [ $10^{-8}$ ]	$^{10}\text{Be}$ [ $10^9$ átomos/g]	$^9\text{Be}$ [ $10^{17}$ átomos/g]
001H	0,77±0,04	6,27±0,12	5,27±0,32	6,79±0,48	1,29±0,09
002H	2,12±0,04	3,68±0,07	3,42±0,21	2,57±0,18	0,75±0,05
004H	21,03±0,02	0,92±0,02	0,38±0,01	0,68±0,05	1,75±0,12
007H	49,73±0,04	1,33±0,03	0,86±0,05	1,93±0,13	2,23±0,16
010X	69,37±0,02	0,79±0,02	0,45±0,09	0,81±0,06	1,79±0,13
014X	101,35±0,04	1,03±0,02	0,49±0,03	1,58±0,11	3,23±0,23
015X	107,62±0,02	2,08±0,04	0,67±0,01	1,91±0,13	2,85±0,20
017X	127,12±0,02	3,90±0,07	2,58±0,05	3,10±0,22	1,20±0,08
019X	140,80±0,04	0,76±0,01	1,06±0,06	0,98±0,07	0,93±0,07
022X	166,30±0,02	2,08±0,04	1,30±0,02	1,40±0,10	1,08±0,08
025X	194,75±0,04	0,50±0,01	0,49±0,03	0,66±0,05	1,33±0,09
028X	224,05±0,02	0,97±0,02	0,45±0,01	0,95±0,07	2,10±0,15
029X	232,98±0,02	1,34±0,03	0,48±0,01	1,36±0,10	2,86±0,20
031X	252,67±0,04	3,43±0,06	0,81±0,05	2,51±0,18	3,09±0,22



## 4.6 Análisis de los resultados

En regiones suficientemente alejadas del continente donde la depositación de sedimentos es esencialmente hemipelágica,<sup>6</sup> la tasa de sedimentación  $G$  puede considerarse en buena aproximación constante y ser calculada a través de la siguiente expresión:

$$G = \frac{x - x_0}{t - t_0}. \quad (4.1)$$

donde  $t$  es la edad del sedimento a profundidad  $x$  y  $t_0$  la edad del sedimento a una profundidad de referencia  $x_0$ .

Por otra parte, por tratarse el  $^{10}\text{Be}$  de un isótopo inestable con período de semidesintegración  $T_{1/2} = (1,387 \pm 0,012) \times 10^6$  a, el número de núcleos  $^{10}\text{Be}(t_0)$  presentes a tiempo  $t_0$  se reduce de acuerdo a la siguiente ley de decaimiento exponencial:

$$^{10}\text{Be}(t) = ^{10}\text{Be}(t_0) \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}}(t - t_0)\right) \quad (4.2)$$

En estas condiciones, puede verse que el logaritmo de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  decae linealmente con la profundidad:

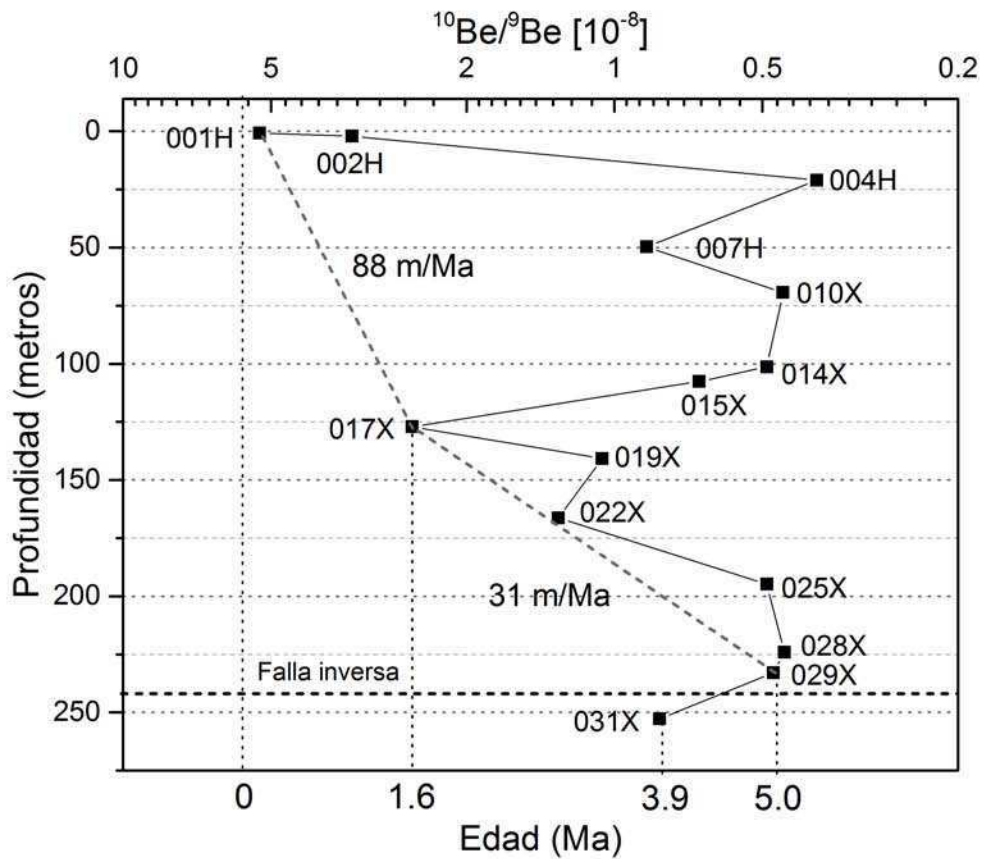
$$\text{Log}\left(\frac{^{10}\text{Be}}{^9\text{Be}}(x)\right) = \text{Log}\left(\frac{^{10}\text{Be}}{^9\text{Be}}(x_0)\right) - \frac{\ln 2}{T_{1/2}} \frac{(x - x_0)}{G} \quad (4.3)$$

Sin embargo, cerca del continente, y en particular cerca de un margen convergente, debido a los diferentes fenómenos mencionados en 4.1, el perfil en profundidad de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  puede resultar muy diferente. Este es el caso de los sedimentos estudiados en este trabajo cuyo perfil en profundidad se analiza en la figura 4.7.

### 4.6.1 Dilución por corrientes turbidíticas

El proceso de depositación que tuvo lugar en los primeros 88 metros de sedimento es probablemente el resultado de una mezcla entre depositación hemipelágica y turbiditas (apéndice D.1). Las turbiditas son conducidas a través de cañones submarinos (ver figura 4.2), y se componen en cierta medida de material erosionado de sus paredes. Dicho material es pobre en  $^{10}\text{Be}$  en comparación con el material superficial más joven. La mezcla del material hemipelágico superficial con el aportado por las turbiditas conlleva por lo tanto a la dilución de sedimento rico en  $^{10}\text{Be}$  (superficial y joven) con sedimento pobre en  $^{10}\text{Be}$  (de las paredes de los cañones, antiguo). Este fenómeno podría explicar que

<sup>6</sup>El sedimento pelágico es un sedimento de grano fino que se acumula lentamente como resultado de la sedimentación de partículas en el suelo del océano abierto, lejos del continente. La depositación hemipelágica no es tan lenta como la pelágica y ocurre más cerca de los continentes.



**Figura 4.7:** Perfil en profundidad de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  medida en 14 muestras de sedimento submarino. Se indican además las tasas de sedimentación correspondientes a cada tramo y la edad de las muestras datadas.

la mayoría de las relaciones isotópicas medidas sean menores a las que corresponderían si todo el sedimento fuese hemipelágico.

A partir del gráfico de la figura 4.7 puede identificarse a las muestras 001H, 017X y 031X como aquellas que sufrieron la menor dilución. Sin embargo, 031X debe excluirse de este grupo ya que una falla inversa fue reportada justo por encima de esta muestra (apéndice D.3). Esto sugiere considerar a la muestra 029X entre las que menor dilución sufrieron, lo que implica también considerar la muestra 022X por encontrarse próxima en la recta que la une con 017X. Bajo estas consideraciones, la relación isotópica de las muestras 001H, 017X, 022X y 029X, entendidas como una cota inferior de la relación isotópica que los sedimentos hubieran tenido de no haber sido diluidos por turbiditas, son plausibles de ser consideradas para datación.

Por el contrario, la muestra 004H puede identificarse como la que mayor dilución sufrió dado que a juzgar por su profundidad y contenido de microfósiles (apéndice D.2) se trata de un sedimento relativamente joven, sin embargo, su relación isotópica es la menor de las 14 medidas. Cabe mencionar que ninguna falla fue sugerida antes de los 200 m de profundidad (apéndice D.3).

La litoestratigrafía de las muestras (apéndice D.1) también da cuenta del hecho de que la dilución isotópica sufrida por las muestras 019X, 025X y 028X sea aparentemente menor que la sufrida por las muestras 002H, 004H, 007H, 010X, 014X y 015X (ver figura 4.7), ya que la presencia de turbidita es menor en el primer grupo en comparación con el segundo.

#### 4.6.2 Datación de muestras y confirmación de falla

La muestra 017X, a una profundidad de 127 m, fue datada por Spiegler et al. (1995) en  $(1,6 \pm 0,5)$  Ma.<sup>7</sup> Utilizando esta muestra como punto de referencia para la ecuación (4.3), puede calcularse la edad de aquellas muestras cuya relación isotópica no se considere apreciablemente diluida. En particular, de acuerdo a la relación isotópica de la muestra 001H su edad es menor a 0,67 Ma<sup>8</sup>, con un valor esperado de 0,17 Ma. Este valor es compatible con los nanofósiles hallados en su interior (ver tabla D.1), que sugieren una edad menor a 0,27 Ma. Cabe destacar que si la relación isotópica de la muestra 001H hubiese sido un 9 % mayor, o bien, la de la muestra 017X un 9 % menor, la edad de la muestra 001H calculada por este método hubiese resultado negativa. Que ese no haya sido el caso, refuerza la hipótesis de que estas muestras no fueron diluidas (o, aunque mucho menos probable, diluidas en la misma proporción).

<sup>7</sup>La edad de esta muestra se determinó por la ocurrencia y ausencia de determinadas especies de microfósiles, razón por la cual se le asignó una incerteza del 30 % (ver apéndice D.2).

<sup>8</sup>Cota superior del intervalo con 68 % de nivel de confianza.

Continuando con la datación por  $^{10}\text{Be}$ , la edad de la muestra 022X equivale a  $(3,0 \pm 0,6)$  Ma, mientras que para las muestras, 029X y 031X a profundidades de 233 m y 253 m, corresponden edades de  $(5,0 \pm 0,7)$  Ma y  $(3,9 \pm 0,7)$  Ma respectivamente (ver figura 4.7). Se recupera entonces una estructura compatible con la existencia de una falla inversa (Rodríguez et al., 2014). Si bien este argumento se sostiene sólo si estas muestras no fueron diluidas por corrientes turbidíticas, es importante señalar que a esta profundidad comienza una tercera unidad en cuya litoestratigrafía la presencia de turbiditas es mucho menor que en las unidades anteriores (apéndice D.1).

#### 4.6.3 Cálculo de tasas de sedimentación

La tasa de sedimentación puede calcularse a partir de la ecuación 4.1. Para los primeros 130 metros equivale a  $G_1 \sim 88$  m/m.a. y en los 100 metros posteriores a la muestra 017X a  $G_2 \sim 31$  m/m.a. (ver figura 4.7). El cambio a partir de los 130 metros es consistente con la reducción del volumen de turbidita responsable de las diluciones isotópicas observadas. Estos valores pueden compararse con el estimado por Behrmann et al. (1992) utilizando datación por microfósiles, quienes asignan a los primeros 200 metros de sedimento una tasa de sedimentación  $G_B = 46,9$  m/m.a. (apéndice D.3). Sin embargo, debe notarse que ellos supusieron una única tasa de sedimentación para todo el intervalo. Si se calcula la tasa de sedimentación efectiva entre las muestras 001H y 029X se obtiene  $G_e \sim 47$  m/m.a. Este valor es virtualmente idéntico al reportado, más aún teniendo en cuenta las incertezas asociadas a estos resultados ( $\sim 20$  %).

#### 4.6.4 Inventario de $^{10}\text{Be}$ en sedimentos submarinos

Como se discutió anteriormente, existen razones para considerar a la muestra 001H dentro del conjunto de muestras que no fueron apreciablemente diluidas. Por otro lado, 001H es la más superficial de las muestras estudiadas (a tan solo 77 cm de la superficie), y por lo tanto la más joven.

Utilizando la edad de la muestra 017X como referencia, la edad de la muestra 001H equivale a  $(0,17^{+0,57}_{-0,17})$  Ma, y a menos de 0,27 Ma datando con nanofósiles. La primera implicaría haber perdido el 8 % de los núcleos de  $^{10}\text{Be}$  originales, mientras que la segunda casi el 13 %. Esta muestra cumple entonces, en primera aproximación, las condiciones necesarias para ser considerada representativa del sedimento hemipelágico actual. Siendo más general, esto significa considerar que su concentración de  $^{10}\text{Be}$  puede utilizarse como representativa de aquella presente en el sedimento hemipelágico en el momento de su depositación. Por lo tanto, en adelante se usará:<sup>9</sup>

---

<sup>9</sup>La incerteza aquí indicada es la proveniente de la medición por AMS (ver tabla 4.2).

$${}^{10}\text{Be}(t=0) = (6,8 \pm 0,5) \times 10^9 \text{ átomos/g}$$

Para determinar el inventario de  ${}^{10}\text{Be}$ , entendido como la cantidad total de átomos de  ${}^{10}\text{Be}$  presentes en los sedimentos, debe tenerse en cuenta que las concentraciones de  ${}^{10}\text{Be}$  medidas corresponden sólo a la fracción autigénica.

Bourles et al. (1989) calcularon que el  $\varepsilon = (73 \pm 11) \%$  del  ${}^{10}\text{Be}$  presente en los sedimentos se encuentra en la fracción autigénica extraída con el procedimiento químico utilizado en este trabajo. Sabiendo además que el porcentaje de material lixiviado al extraer la fracción autigénica de la muestra 001H fue  $f_a = (10,2 \pm 0,2) \%$ , la concentración total de  ${}^{10}\text{Be}$  por gramo de sedimento superficial puede calcularse de la siguiente manera:

$${}^{10}\text{Be}_{\text{total}} = {}^{10}\text{Be}_{\text{autigénico}} \frac{f_a}{\varepsilon} \quad (4.4)$$

que si se evalúa en el valor superficial resulta en:

$${}^{10}\text{Be}_{\text{total}} = (0,95 \pm 0,16) \times 10^9 \text{ átomos/g.}$$

Considerando que este valor es representativo de la concentración en sedimentos hemipelágicos (no diluidos por turbiditas pobres en  ${}^{10}\text{Be}$ ) es posible calcular el perfil de  ${}^{10}\text{Be}$  en sedimentos hemipelágicos depositados sobre la placa oceánica, para lo cual se requiere además la tasa de sedimentación  $G$ . Esto constituye el inventario de  ${}^{10}\text{Be}$  en los sedimentos acumulados sobre la placa. Este resultado será utilizado como parámetro de entrada del modelo desarrollado en el próximo capítulo para estudiar el reciclado de sedimentos durante la subducción.

# 5

## Reciclado de sedimentos submarinos

En este capítulo se presenta el estudio realizado sobre el reciclado de sedimentos submarinos durante la subducción de la placa de Nazca. Para ello se determinó la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en cenizas de cuatro volcanes de la Cordillera de los Andes (Hudson, Chaiten, Puyehue y Quizapu) y una muestra de intraplaca utilizada como blanco geológico. Se desarrolla y evalúa un modelo que, a partir del inventario de  $^{10}\text{Be}$  medido en los sedimentos y mediciones de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en cenizas y rocas volcánicas, permite estimar la fracción de material subducido que participa en la conformación de los magmas extruidos.

### 5.1 Antecedentes

Si bien el concepto de reciclado de sedimentos en arcos volcánicos fue propuesto por primera vez por Coats (1962), no fue hasta la década de 1980 que, gracias a las sensibilidades alcanzadas por la técnica de AMS, se comenzó a utilizar el radionucleido  $^{10}\text{Be}$  para estudiar este sistema.

Tera et al. (1986) estudiaron rocas de arco volcánico y basaltos utilizados como grupo de control. En los primeros observaron concentraciones de hasta  $20 \times 10^6$  átomos de  $^{10}\text{Be}$  por gramo, mientras que en el grupo de control menos de  $10^6$ . Diferentes escenarios fueron propuestos y modelados en este trabajo para el reciclado de sedimentos utilizando determinaciones previas de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos submarinos en el orden de  $5 \times 10^9$  átomos/g. Estos autores estimaron que la participación de sedimentos en la conformación de los magmas eruptados debía encontrarse entre 1 - 10 %. Si bien muchos trabajos siguieron esta línea de investigación (Morris y Tera, 1989, Morris et al., 1990, Sigmarsson et al., 1990), todos ellos continuaron utilizando los modelos hasta entonces propuestos.

Hickey-Vargas et al. (2002) midieron la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en rocas del volcán Villarrica ( $39^\circ 25' \text{ S } 71^\circ 56' \text{ O}$ ) y pequeños centros de erupción cercanos. Para explicar

diferencias significativas observadas entre los mismos sugirieron la posibilidad de que componentes de magmas sean retenidos en cámaras magmáticas por tiempos de entre 350 k.a. y 3 m.a.

Dreyer et al. (2010) midieron tanto la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en magmas como la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos submarinos del margen convergente de Kurile, Rusia. A partir de estas mediciones estimaron que entre un 8 - 14 % del  $^{10}\text{Be}$  subducido junto al sedimento reaparece en el arco volcánico. En su modelo tuvieron en cuenta el flujo de sedimento subducido y el flujo de material extruido y discutieron los diferentes escenarios propuestos inicialmente por Tera et al. (1986).

No se registran en la literatura trabajos que hayan determinado el inventario de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos submarinos sobre la placa de Nazca y por lo tanto tampoco, trabajos que hayan relacionado dicho inventario con la concentración de  $^{10}\text{Be}$  eruptado en volcanes de la Cordillera de los Andes.

## 5.2 Modelado del reciclado de sedimentos

A fin de estimar la fracción de los sedimentos subducidos que participa de la formación de los magmas eruptados, fue necesario desarrollar un modelo que tenga en cuenta los mecanismos por los cuales la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en cenizas y rocas volcánicas ( $\sim 10^7$  átomos/g) es significativamente menor que en los sedimentos submarinos superficiales ( $\sim 10^9$  átomos/g). Además, debido a la complejidad del escenario que se pretende modelar, fue necesario trabajar sobre un conjunto de hipótesis que permitan reducir las variables presentes a un conjunto medible y/o disponible en la literatura. Dichas hipótesis serán explicitadas en la sección 5.2.1.

En cuanto a los mecanismos responsables de modificar la concentración de  $^{10}\text{Be}$ , existen al menos cinco que deben ser tenidos en cuenta:

1. Pérdida de una fracción superficial de sedimentos acretados.
2. Dilución por homogeneización de sedimentos jóvenes y antiguos.
3. Decaimiento del  $^{10}\text{Be}$  durante el tiempo de reciclado.
4. Diferencia entre el flujo de material subducido y extruido.
5. Pérdida de átomos que no regresan a la superficie.

**Acreción y homogeneización de sedimentos** La concentración media de  $^{10}\text{Be}$  en el sedimento subducido es el resultado de la homogeneización de todo el material que no es acretado sobre la placa continental y se mezcla durante la subducción. Para modelar este efecto puede hacerse uso del perfil en profundidad esperado para la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en

sedimentos cuando se encuentran lejos de la zona de subducción (discutido en la sección 4.6).

Considerando que una fracción de profundidad  $x$  en la parte superior de los sedimentos es acretada sobre la placa continental, y por lo tanto no participa de la subducción, a partir de la expresión 5.1 se puede obtener el valor medio de la concentración de la fracción que sí participa:

$${}^{10}\text{Be}(x) = \frac{1}{H-x} \int_x^H {}^{10}\text{Be}(x') dx' \quad (5.1)$$

donde  $H$  es la profundidad total de sedimentos. Considerando ahora la ecuación (4.2) escrita en términos de la tasa de sedimentación  $G$  (expresión 4.1) es posible integrar (5.1) y obtener la siguiente expresión:

$${}^{10}\text{Be}(x, G, H) = {}^{10}\text{Be}(0) \frac{T_{1/2} G}{\ln 2(H-x)} \left[ \exp\left(-\frac{\ln 2 x}{T_{1/2} G}\right) - \exp\left(-\frac{\ln 2 H}{T_{1/2} G}\right) \right]$$

o equivalentemente

$${}^{10}\text{Be}(a, \tau) = {}^{10}\text{Be}(0) \frac{T_{1/2}}{\ln 2(1-a)\tau} \left[ \exp\left(-\frac{\ln 2 a \tau}{T_{1/2}}\right) - \exp\left(-\frac{\ln 2 \tau}{T_{1/2}}\right) \right] \quad (5.2)$$

donde  $\tau = H/G$  es el tiempo de acumulación de sedimentos sobre la placa oceánica al momento en que subdujo aquellos átomos de  ${}^{10}\text{Be}$  que son eruptados en la actualidad y  $a = x/H$  la fracción de sedimento acretado.

**Decaimiento del  ${}^{10}\text{Be}$  durante el reciclado** El decaimiento del  ${}^{10}\text{Be}$  durante el tiempo de reciclado puede calcularse a partir de la ecuación (4.2) que se repite a continuación:

$${}^{10}\text{Be}(t) = {}^{10}\text{Be}(0) \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \xi\right)$$

donde  $T_{1/2}$  es el período de semidesintegración del  ${}^{10}\text{Be}$  y  $\xi$  es el tiempo transcurrido desde que el  ${}^{10}\text{Be}$  comienza a subducir hasta que reaparece en los volcanes.

**Relación entre caudales** La fracción  $f$  (átomos de  ${}^{10}\text{Be}$  subducidos que participan de la formación de magmas eruptados) puede escribirse como el cociente entre el caudal de átomos de  ${}^{10}\text{Be}$  (átomos/km-de-arco/m.a.) eruptados y subducidos, que en términos de las variables del modelo resulta:

$$f = \frac{\Phi_e \times {}^{10}\text{Be}_m}{\Phi_s \times {}^{10}\text{Be}_s(a, \tau) \times \exp\left(-\frac{\ln 2}{T_{1/2}} \xi\right)} \quad (5.3)$$

donde  ${}^{10}\text{Be}_s(a, \tau)$  se calcula a partir de la expresión 5.2 y  $\Phi_s$  y  $\Phi_e$  representan el flujo de material subducido y extruido respectivamente.



La ecuación (5.3) pone en evidencia que la fracción de átomos de  $^{10}\text{Be}$  aportados por los sedimentos que participa de la conformación de magmas es función del porcentaje de sedimentos acretados  $a$  y el tiempo de acumulación  $\tau$  de la placa cuando subdujo.

La concentración de  $^{10}\text{Be}(0)$  en sedimentos superficiales se determinó en la sección 4.6.4, las concentraciones de  $^{10}\text{Be}_m$  en los volcanes se obtuvo a través de mediciones en rocas y cenizas volcánicas. El proceso de medición y sus resultados serán descritos en las siguientes secciones. Los parámetros restantes ( $\Phi_e$ ,  $\Phi_s$ ,  $\xi$ ,  $T_{1/2}$ ) pueden encontrarse en la literatura, como se discutirá en la sección 5.2.1.

### 5.2.1 Parámetros del modelo

**Tiempo de reciclado** El tiempo necesario para que parte del material subducido regrese a la superficie en erupciones volcánicas puede ser calculado utilizando la velocidad de subducción de la placa y la longitud del canal de subducción.

El promedio de las velocidades de subducción de la placa de Nazca a los  $46^\circ$  de latitud indicada por los diferentes modelos existentes corresponde a  $(7,5 \pm 0,5)$  cm/año (Unavco<sup>1</sup>), mientras que la longitud del canal de subducción es de aproximadamente  $(200 \pm 50)$  km (Martinod et al., 2010). Esto se corresponde con un tiempo de tránsito  $\xi = (3,5 \pm 0,7)$  m.a., valor que se encuentra en acuerdo con el estimado por Gill (1981) de 3,8 m.a. y utilizado por Morris y Tera (1989) para realizar sus estimaciones.

**Flujo de material subducido y extruido** En un trabajo publicado por Völker et al. (2011), en el que calcularon el volumen de 65 volcanes de la zona volcánica sur de los Andes, estimaron el volumen de magmas extruidos en esta zona volcánica sur de los Andes en el rango de  $\Phi_e = 10 - 13 \text{ km}^3/\text{km-de-fosa}/\text{m.a.}$

Para estimar el flujo de sedimentos subducidos se deben tener en cuenta dos factores importantes: su fuerte dependencia con la latitud (Behrmann y Kopf, 2001), y la situación de los mismos hace 3,5 m.a. Esto último debido a que son aquellos sedimentos los que aportaron el  $^{10}\text{Be}$  que actualmente erupcionan los volcanes estudiados.

En particular, para aplicar el modelo en el volcán Hudson, se requerirá conocer la tasa de sedimentos subducidos  $\Phi_s$  hace 3,5 m.a. a  $46^\circ$  de latitud. Teniendo en cuenta que dicha ubicación correspondía entonces a un punto de pre-colisión con la Dorsal de Chile, se considerará en primera aproximación, que la situación era similar a la actual situación de los sedimentos en la línea sísmica 734, donde la tasa de sedimento subducido fue calculada entre  $\Phi_s = 78 - 81 \text{ km}^3/\text{km-de-fosa}/\text{m.a.}$  (Behrmann y Kopf, 2001). Por lo tanto, el cociente entre material subducido y extruido equivale a  $\Phi_s/\Phi_e = 6,9 \pm 0,9$ .

<sup>1</sup>[www.unavco.org](http://www.unavco.org)

**Balance de sedimento acretado y subducido** El balance entre sedimentos acretados y subducidos en las cercanías del Punto Triple de Chile también fue estudiado por Behrmann y Kopf (2001). Ellos indican que la tasa de sedimentación y la tasa de subducción en vecindades del Punto Triple de Chile es función de la latitud, y que resulta evidente que la subducción de la Dorsal de Chile induce cambios en la escala de los 10 m.a. en el comportamiento de acreción en este margen convergente. Según sus consideraciones, el porcentaje de sedimento acretado a  $44^{\circ} 30'$  de latitud (línea sísmica 734), equivale a 21 %. Mientras que a  $45^{\circ} 55'$  (línea sísmica 745), considerando los datos bioestratigráficos de los sitios 859, 860 y 861 del ODP, el porcentaje de sedimento acretado se encontraría entre 38 % y 81 %. Estas latitudes corresponden a una zona de pre-colisión (ver figura 4.4).

La más austral de las muestras volcánicas analizadas en este trabajo son las cenizas del volcán Hudson, que se encuentra prácticamente a la misma latitud que el Punto Triple de Chile donde actualmente ocurre la subducción de la Dorsal de Chile. Los sedimentos que hace 3,5 m.a. hicieron su aporte de  $^{10}\text{Be}$  a los magmas recientemente erupcionados por el Hudson, hace 3,5 m.a. se encontraban, como se mencionó anteriormente, en una zona de pre-colisión equivalente a la actual situación de la línea sísmica 734 y por lo tanto puede utilizarse, en buena aproximación, el valor reportado de  $a = 21\%$  para este volcán.

Lamentablemente, no existen aun en la literatura estudios del balance de sedimento acretado y subducido en las latitudes de los volcanes Chaiten, Puyehue y Quizapu.

**Edad de la placa en función de la latitud** El parámetro  $\tau = H/G$  (tiempo de acumulación de sedimentos) del cual depende la fracción  $f$  que se quiere estimar, bajo ciertas consideraciones que serán discutidas en la sección 5.2.2, puede ser considerado igual a la edad de la placa que subduce.

Dependiendo de la latitud del volcán a considerar, la edad de la placa de Nazca que subdujo hace 3,5 m.a. a su misma latitud será diferente. Además, la edad de la placa que subduce a una latitud fija no es constante en el tiempo debido a que la Dorsal de Chile también se acerca a la fosa. Si bien la placa de Nazca que subduce hoy entre las fracturas de Taitao y Darwin es muy joven ( $< 1$  Ma), la placa subducida hace 3,5 m.a. a la misma latitud tenía una edad de  $\sim 7$  Ma (porque la dorsal se encontraba más lejos). Lo mismo sucede con la placa entre las fallas de Darwin y Guamblin que hoy subduce con una edad de  $\sim 2$  Ma pero hace 3,5 m.a. lo hacía con una edad de  $\sim 8$  Ma. Dado que el volcán Hudson se encuentra prácticamente en la continuación de la línea definida por la zona de fractura de Darwin, se considerará que el sedimento que aportó el  $^{10}\text{Be}$  que contenían los magmas de su última erupción, se encontraba sobre una placa de  $(7,5 \pm 1,0)$  Ma.

Con el mismo razonamiento, y en base a los trabajos de Cande y Leslie (1986), Tebbens et al. (1997), puede acotarse la edad de la placa que subdujo hace 3,5 m.a. a las

latitudes en que se encuentran los otros tres volcanes estudiados en este trabajo: Chaiten  $> 18$  Ma, Puyehue  $> 25$  Ma y Quizapu  $> 35$  Ma.

### 5.2.2 Hipótesis y rango de validez

El modelo presentado en la sección 5.2 se sustenta sobre un determinado conjunto de hipótesis que es necesario señalar, principalmente, para poner de manifiesto su rango de validez y la correcta interpretación de las estimaciones que a partir de él puedan hacerse.

En primer lugar, en todo el desarrollo se considera que el aporte de  $^{10}\text{Be}$  a los magmas lo realizan únicamente los sedimentos acumulados por depositación hemipelágica sobre la placa oceánica. Es decir, no se considera la posible participación de sedimento acretado, ni el aportado por corrientes turbidíticas (generalmente pobres en  $^{10}\text{Be}$ ) directamente a la fosa. Por lo tanto, el porcentaje de participación  $f$  que devuelve el modelo debe ser interpretado como: la fracción de sedimentos hemipelágicos incorporados por la placa oceánica que luego reaparecen en los magmas eruptados, bajo la suposición de que el aporte de cualquier otra componente es despreciable frente a esta.

En segundo lugar, se utiliza la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos hemipelágicos acretados no diluidos por turbiditas, como representativa de la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos hemipelágicos depositados sobre la placa oceánica. Esta aproximación es válida en tanto la tasa de sedimentación (sin considerar corrientes turbidíticas) en ambas placas pueda considerarse similar. Por lo tanto, esto no es válido cuando la placa se encuentra lejos del continente y la depositación es pelágica.

En lo que se refiere al tiempo de reciclado, el modelo no contempla la posibilidad de que componentes de los magmas sean retenidas en cámaras magmáticas como oportunamente fue propuesto por Hickey-Vargas et al. (2002) (discutido en la sección 5.1), lo cual implicaría que el tiempo de reciclado sea mayor al calculado. Por otro lado, la velocidad de subducción de la placa de Nazca no es exactamente la misma en las diferentes latitudes de los volcanes estudiados, siendo algo mayor hacia el norte ( $\sim 9$  cm/a). Esto reduce el tiempo de tránsito que la placa necesita para recorrer el canal de subducción y por lo tanto el tiempo total de reciclado.

Dado que la tasa de sedimentación no es constante durante el viaje de la placa oceánica hacia la fosa, sino que aumenta conforme esta se acerca al continente, el parámetro  $\tau = H/G$ , se puede considerar en primera aproximación igual a la edad de la placa a latitudes donde esta se haya creado relativamente cerca de la fosa (por ejemplo, a  $46^\circ$  de latitud sur). Sin embargo, a latitudes menores a los  $\sim 40^\circ$  esta aproximación pierde validez, ya que la dorsal donde nace la placa se encuentra tan lejos del continente que, la tasa de sedimentación cuando la placa era joven es despreciable frente a la correspondiente a los últimos millones de años antes de subducir.

Al escribir el caudal de  $^{10}\text{Be}$  que ingresa y egresa en el sistema de reciclado no se realizó una corrección por densidad. Esto se sustenta en el hecho de que la densidad de los granos de sedimento ( $2,6 - 2,9 \text{ g/cm}^3$ ) se encuentra en el mismo rango que la densidad que los basaltos.

Tanto el flujo de material subducido como el de material extruido depende de la latitud y de la época que se considere. Los valores reportados en la bibliografía y utilizados para evaluar el modelo son válidos cerca del Punto Triple de Chile. Una evaluación más precisa del modelo en volcanes alejados de esta región requeriría disponer de esta información a sus correspondientes latitudes.

En resumen, la hipótesis del modelo desarrollado se cumplen en buena aproximación para el volcán Hudson, pero la utilización de este mismo modelo a otras latitudes debe hacerse con sumo cuidado.

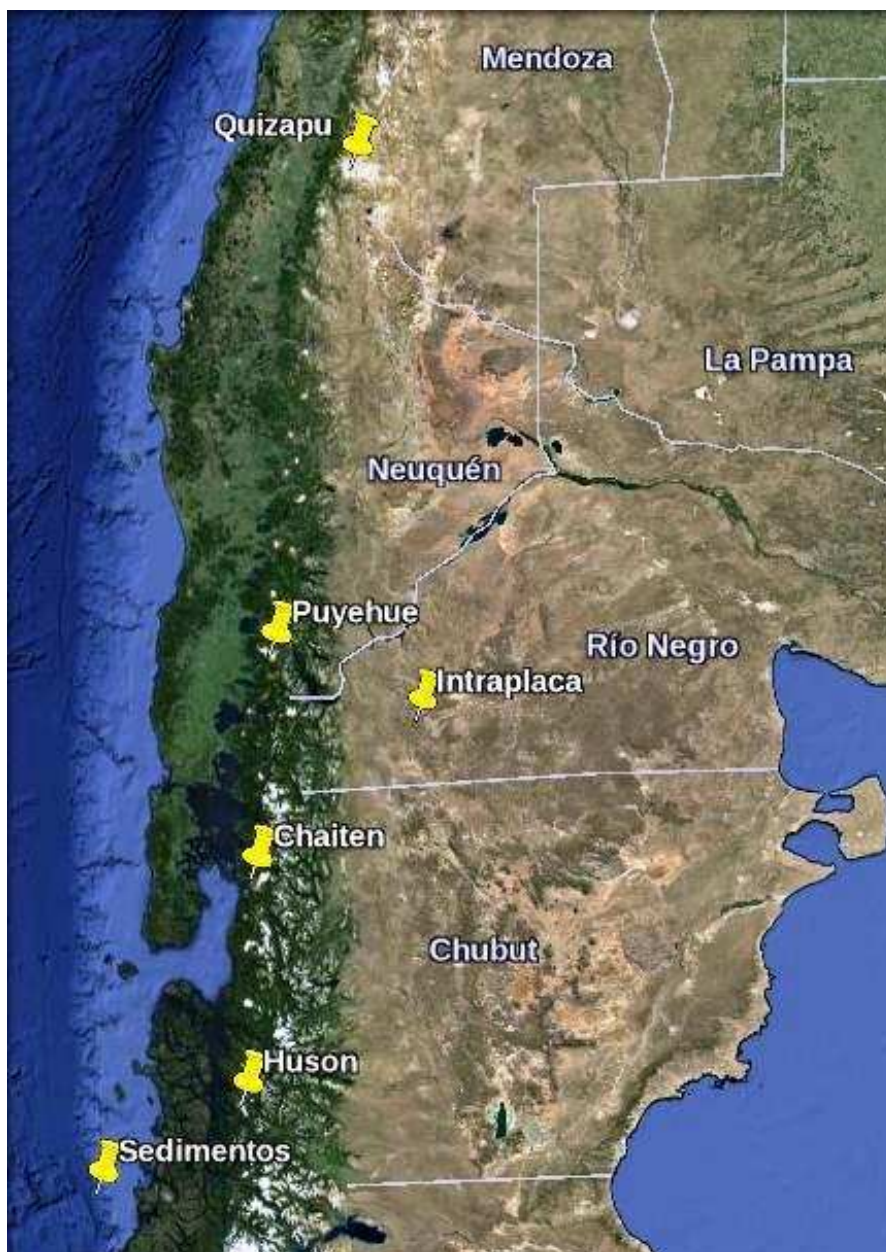
### 5.3 Cenizas y rocas volcánicas

Para cuantificar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en rocas volcánicas se utilizaron cenizas eruptadas por los volcanes Quizapu ( $35^\circ 39' \text{ S } 70^\circ 45' \text{ O}$ ; erupción de abril de 1932), Puyehue ( $40^\circ 35' \text{ S } 72^\circ 07' \text{ O}$ , erupción de junio de 2011), Chaiten ( $42^\circ 49' \text{ S } 72^\circ 38' \text{ O}$ , erupción de mayo del 2008), y Hudson ( $45^\circ 54' \text{ S } 72^\circ 58' \text{ O}$ , erupción de agosto de 1991). Y rocas volcánicas del volcán Quizapu (misma erupción) y Cordón Caulle (mayo de 1960). Además, una muestra de intraplaca que fue considerada como blanco geológico (o muestra control). Dicha muestra fue recolectada en Río Negro ( $41^\circ 37' \text{ S } 70^\circ 06'$ ) en el 2008, donde la contaminación con  $^{10}\text{Be}$  aportado por los sedimentos se supone despreciable. La ubicación de cada muestra se presenta en el mapa de la figura 5.1.

Las muestras rocosas fueron tratadas en el INGEIS (Instituto de Geología Isotópica, UBA/CONICET) antes de ser atacadas químicamente. En una primera instancia se extrajeron los primeros 2 cm de cada muestra que habían sido expuestos a lluvias y rayos cósmicos con una sierra de diamante. El corazón de cada muestra fue procesado en segunda instancia para reducirlo a pequeños granos. Finalmente, con un mortero de ágata, las muestras fueron molidas hasta lograr un fino polvo. En estas condiciones, donde la relación superficie-volumen de cada grano es mucho mayor que en la roca original, un ataque químico resulta significativamente más eficiente.

### 5.4 Procesamiento químico de las muestras

La principal diferencia en el tratamiento de las muestras volcánicas con respecto a los sedimentos submarinos es consecuencia de la ubicación (en la muestra) del  $^{10}\text{Be}$  de interés. En los sedimentos submarinos, el  $^{10}\text{Be}$  utilizado para datación fue aquel que formaba



**Figura 5.1:** Ubicación geográfica de los volcanes cuyas rocas y/o cenizas fueron estudiadas en este trabajo.

parte de la fracción autigénica. En las muestras volcánicas en cambio, el  $^{10}\text{Be}$  de interés se encuentra en el interior de los silicatos que conforman las tefras.<sup>2</sup> El  $^{10}\text{Be}$  en la superficie de las tefras puede provenir de contaminación meteórica, es decir, provocada por el agua de lluvia. Al tratar entonces con muestras volcánicas también se realizó una lixiviación pero con la finalidad opuesta a la que motivó este procedimiento en sedimentos (ver subsección 5.4.1).

Una vez eliminado el  $^{10}\text{Be}$  meteórico adsorbido, se atacó la muestra con una mezcla ácida de  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{HCl}$  y  $\text{HF}$  concentrados a una temperatura de  $100\text{ }^\circ\text{C}$  en vasos de teflón durante 2 horas. De este modo, y utilizando la cantidad de ácido necesario, todas las muestras fueron llevadas a solución.

En este punto, se procedió a agregar la mínima cantidad de material portador necesaria para poder realizar la extracción química del Be (ver subsección 5.4.2). Luego, el procedimiento químico empleado para extraer el Be es esencialmente el mismo que se utilizó en sedimentos, basado en el trabajo de Merchel y Herpers (1999) y esquematizado en el diagrama de la figura 4.5.

#### 5.4.1 Extracción de la fracción no meteórica

Para eliminar el  $^{10}\text{Be}$  meteórico o atmosférico adsorbido se sometió a las muestras a cuatro lavados sucesivos de una hora de duración utilizando un agitador. El primer y último lavado se realizaron utilizando agua ultrapura ( $18\text{ M}\Omega\text{-cm}$ ), el segundo con una solución de  $\text{HNO}_3$  al 50 % y el tercero con una solución de  $\text{HF}$  diluido al 10 %. En los primeros dos no se observó reducción de la masa de muestra, pero el tercero llevó a solución aproximadamente el 50 % de la masa de cada una. Otros procedimientos menos agresivos pueden encontrarse en la bibliografía (Braucher et al., 2004) con excelentes resultados. En ese sentido, reducir hasta un 50 % la muestra con el ataque de  $\text{HF}$  asegura la eliminación de la fracción externa posiblemente contaminada con  $^{10}\text{Be}$  meteórico.

En las rocas es en general suficiente retirar las capas externas de la muestra, sin embargo, luego de que las mismas fueran reducidas a polvo, también se les practicó estos sucesivos lavados.

#### 5.4.2 Material portador utilizado

Debido a la baja concentración de Be en la muestra, del orden de 1 ppm en cenizas y rocas volcánicas, se cuenta con alrededor de  $1\text{ }\mu\text{g}$  de Be por muestra tratada ( $\sim 1\text{ g}$ ), y por lo tanto resulta prácticamente imposible su extracción. Por esta razón, como fue oportunamente señalado en la sección 2.3, es de fundamental importancia conseguir material que pueda ser utilizado como portador, es decir, Be con una muy baja relación

---

<sup>2</sup>Fragmento sólido de material volcánico expulsado a través de la columna eruptiva.

$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  para agregar a la muestra antes de comenzar la marcha química. De hecho, la primera medición cuantitativa de la relación  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  que tuvo lugar en el marco de esta tesis doctoral fue en busca de garantizar material portador de relación isotópica suficientemente baja que pudiera ser usada para procesar las muestras. Para ello se midió el  $^{10}\text{Be}$  presente en una muestra de BeO comercial.

## 5.5 Resultados experimentales

En esta sección se presentan los resultados obtenidos al determinar la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en material comercial utilizado luego como portador, cenizas y rocas volcánicas y en una muestra de intraplaca (blanco geológico).

### 5.5.1 Medición de $^{10}\text{Be}$ en material comercial

La medición de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en el material candidato a ser utilizado como portador fue realizada con el acelerador VERA de 3 MV de terminal (ver apéndice C.2). La técnica de medición utilizada en esta instalación es similar a la ya descrita en la sección 3.3 bajo el título frenado parcial y deflexión electrostática de  $^{10}\text{Be}$  y  $^{10}\text{B}$ . La única diferencia es que la deflexión en este acelerador no es electrostática sino magnética. En esta instalación, luego de interponer una folia de nitruro de silicio ( $\text{Si}_3\text{N}_4$ ) de 500 nm en el camino del haz, se utilizó un imán selector para dirigir las partículas hacia diferentes líneas experimentales según la técnica de medición a utilizar. Es este mismo imán quien curva de diferente forma la trayectoria de los iones de B y de Be, ya que luego de atravesar la folia de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  los últimos cuentan con más energía que los primeros. Durante las medición de  $^{10}\text{Be}$  se utilizó la línea que cuenta al final con una cámara de ionización de ánodo segmentado.

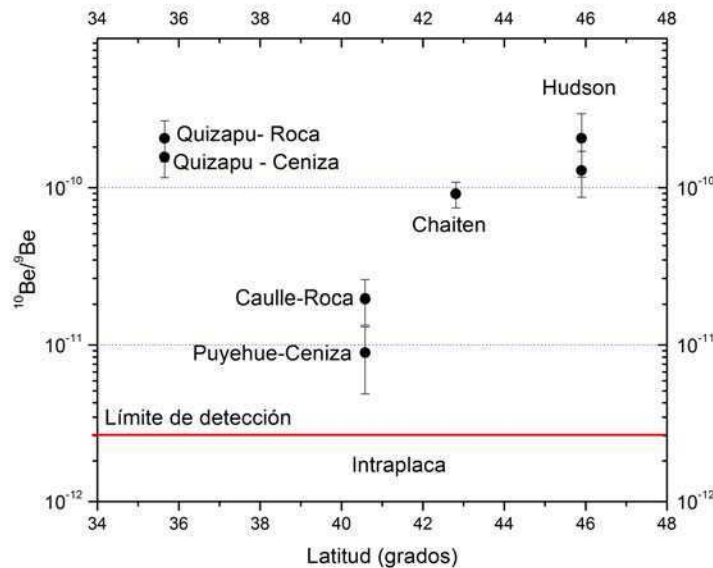
El resultado obtenido fue  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (9,2 \pm 0,8) \times 10^{-15}$ . Esto permitió utilizar con seguridad este material como portador en el proceso químico de extracción del Be de las muestras de interés, ya que la relación isotópica esperada en las muestras es del orden de  $\sim 10^{-11}$ , es decir, tres órdenes de magnitud mayor.

La preparación de los cátodos con material portador no requirió de trabajo químico previo dado que el material utilizado fue BeO comercial con una pureza certificada en 99,9 %. Sólo fue apropiadamente mezclado con el material conductor y aglutinante que, siguiendo el protocolo utilizado en esta instalación fue Ag en igual proporción que BeO.

### 5.5.2 Mediciones de $^{10}\text{Be}$ en cenizas y rocas volcánicas

Las mediciones realizadas para determinar la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en cenizas y rocas volcánicas se llevaron a cabo con el acelerador SARA (Chamizo et al., 2008b). Se trata de un acelerador de 1 MV de tensión de terminal emplazado en el Centro Nacional de Aceleradores de Sevilla, España. La técnica utilizada en esta instalación para medir  $^{10}\text{Be}$  es la de frenado parcial y deflexión electrostática que se desarrolló en la sección 3.3. Los detalles técnicos de esta instalación pueden encontrarse en el apéndice C.1.

En la figura 5.2 se presentan los resultados obtenidos en función de la latitud de los volcanes.

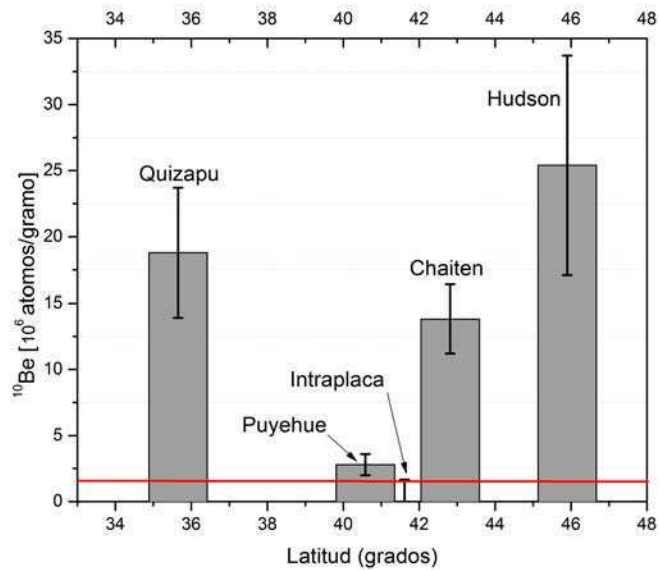


**Figura 5.2:** Relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en las muestras volcánicas analizadas en este trabajo. Se incluye además el límite de detección debajo del cual se encuentra el valor obtenido para la muestra de intraplaca.

Como puede observarse, el basalto de intraplaca utilizado como blanco geológico (muestra de control) es efectivamente la que presenta menor relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  encontrándose, de hecho, por debajo del límite de detección.

Utilizando la concentración de Be por gramo de muestra tratada obtenida mediante mediciones por la técnica de ICP-MS, es posible traducir estos resultados en concentraciones de átomos de  $^{10}\text{Be}$  por gramo de muestra. Para conocer el detalle de los cálculos necesarios, ver el apéndice A. En la figura 5.3 se gráfico una única concentración para las muestras del Quizapu y Puyehue que corresponde al promedio de los valores encontrados en roca y ceniza.





**Figura 5.3:** Concentración de  $^{10}\text{Be}$  por gramo de muestra de los volcanes estudiados. Se incluye además el límite de detección debajo del cual se encuentra el valor obtenido para la muestra de intraplaca.

## 5.6 Análisis de los resultados

A continuación, haciendo uso del modelo desarrollado en la sección 5.2, se utilizarán los resultados obtenidos para extraer información de interés sobre el reciclado sedimentos submarinos.

### 5.6.1 Relación entre cenizas, rocas y muestra de control

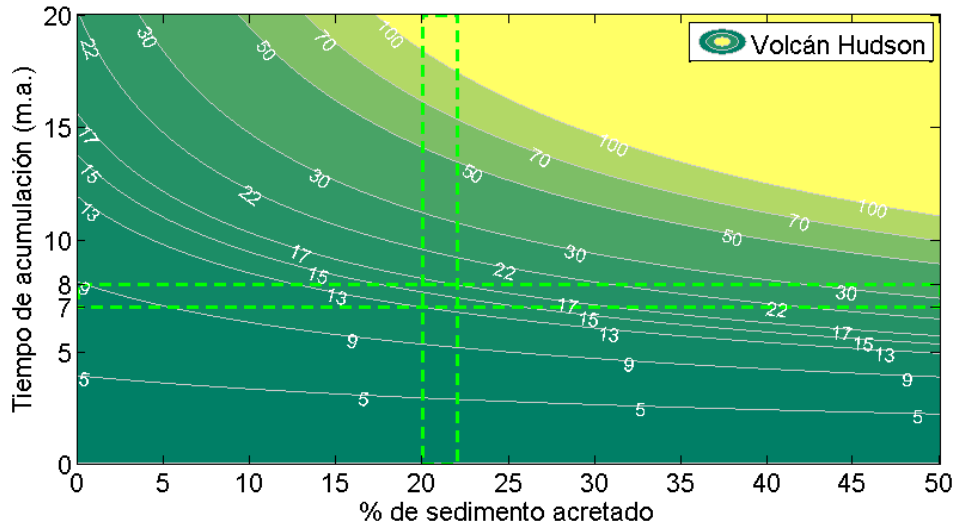
Los valores obtenidos en cenizas y rocas volcánicas, tanto en el volcán Quizapu como del volcán Puyehue son compatibles. Este resultado sugiere que no hay diferencias significativas en la concentración de  $^{10}\text{Be}$  de las tefras y la lava de un mismo volcán.

Por otra parte, las relaciones isotópicas obtenidas, en el rango de  $10^{-11}$  -  $10^{-10}$ , son compatibles con los valores reportados por Tera et al. (1986).

Que la relación isotópica en la muestra de intraplaca resulte por debajo de límite de detección es consistente con que los sedimentos subducidos no hacen aporte a la conformación de este basalto. Al mismo tiempo, confirma que la presencia de  $^{10}\text{Be}$  en las muestras volcánicas da cuenta de la contaminación de los magmas con material introducido en el arco durante la subducción de sedimentos submarinos ricos en  $^{10}\text{Be}$ .

### 5.6.2 Participación de sedimentos en la conformación de magmas

En la figura 5.4 se presenta el resultado de imponer al modelo desarrollado en la sección 5.2 la concentración de  $^{10}\text{Be}$  medida en las cenizas del volcán Hudson, esto es:  $(25 \pm 8) \times 10^6$  átomos/g.



**Figura 5.4:** Modelo sujeto a la concentración medida en el volcán Hudson y los parámetros discutidos en la sección 5.2.1.

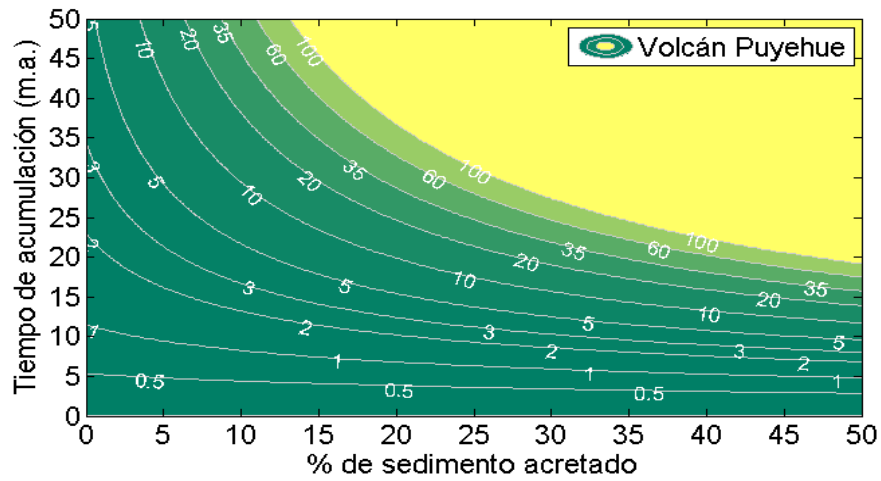
Cada curva de nivel corresponde a un porcentaje de participación  $f$  diferente. La franja vertical en  $a = (21 \pm 1) \%$  y la horizontal en  $\tau = (7,5 \pm 0,5)$  m.a., son los valores fijados con las consideraciones hechas en la sección 5.2.1. Por lo tanto, un porcentaje de participación  $f \sim 15 \%$  es sugerido por el modelo para explicar los valores medidos.

Para incluir todo el rango en el que incursiona  $f$  al variar  $a$  y  $\tau$  dentro de una desviación estándar, resulta que:  $13 \% < f < 17 \%$ . Si además se incluye la incerteza en la concentración de  $^{10}\text{Be}$ , entonces es necesario considerar las curvas del intervalo

$$9 \% < f < 22 \%$$

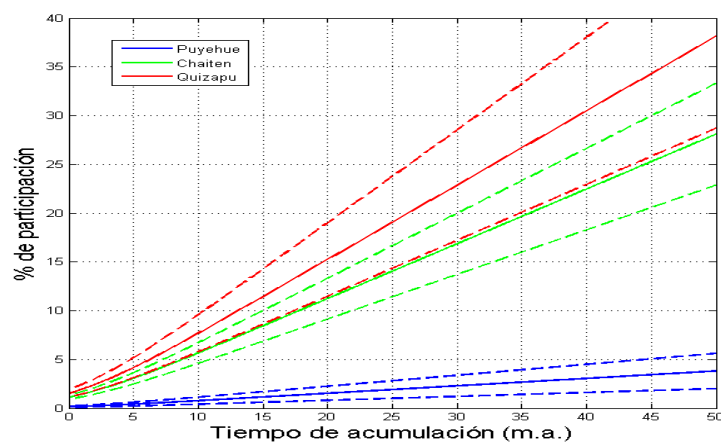
Lo propio puede hacerse para el volcán Puyehue, obteniendo el gráfico de la figura 5.5. Sin embargo, aún no se han reportado en la bibliografía porcentajes de material acretado a estas latitudes.

En lo que se refiere a los volcanes Chaiten y Quizapu es necesario considerar que todo el sedimento hemipelágico aportado por la placa oceánica es subducido para obtener valores de participación compatibles con los observados en otros arcos volcánicos.



**Figura 5.5:** Modelo sujeto a la concentración medida en el volcán Puyehue y los parámetros discutidos en la sección 5.2.1.

En la figura 5.6 se grafica el factor  $f$  en función del parámetro  $\tau$  considerando  $a = 0\%$ . Cada curva corresponde a una concentración de  $^{10}\text{Be}$  diferente, según se trate del volcán Quizapu, Chaiten o Puyehue, y las líneas a trazos a un desvío estándar de la concentración medida. Bajo esta hipótesis de acreción nula, los valores de participación requeridos para Chaiten y Puyehue son compatibles con la edad de la placa de Nazca a sus respectivas latitudes hace 3,5 m.a. Sin embargo, los porcentajes necesarios para explicar los valores observados en el Quizapu resultan mayores al 50 %, evidenciando que aquí la edad de la placa no es una interpretación adecuada del parámetro  $\tau$ , como fue advertido en 5.2.2.



**Figura 5.6:** Modelo sujeto a las concentraciones medidas en los volcanes estudiados.

Parte III

Aplicaciones astrofísicas



El sistema solar contiene una gran cantidad de pequeñas partículas de polvo, con tamaños del orden de las centenas de micrómetros. Se estima que, si se comprimiera todo el polvo entre Jupiter y el Sol, conocido como nube Zodiacal, formaría un cuerpo esférico de aproximadamente 25 km de diámetro (Nesvorný et al., 2010). Estas partículas de polvo viajan hacia el Sol con trayectorias espiraladas, y mientras lo hacen son bombardeadas por rayos cósmicos solares que fragmentan sus núcleos constituyentes creando radionucleidos exóticos, entre ellos  $^{53}\text{Mn}$ .

Una de las motivaciones científicas de esta parte de la tesis fue cuantificar la cantidad de este polvo interplanetario que ingresa a nuestro planeta diariamente. Para hacerlo se utilizó el  $^{53}\text{Mn}$  como trazador de material extraterrestre. A su vez, el proceso de transporte y depositación atmosférico del  $^{53}\text{Mn}$  se determinó a partir de mediciones de  $^{10}\text{Be}$ , el cual es producido en la atmósfera por rayos cósmicos. Utilizando la técnica de AMS se midió el cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  en una muestra de 1.400 kg de nieve antártica y con él, se estableció una cota para el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que arriba al planeta Tierra. Además, para calcular la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  en el polvo interplanetario, se evaluó un modelo de producción de radionucleidos en material extraterrestre.

Por otra parte, utilizando también el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  determinado, se estimó la distancia efectiva a la cual debieron ocurrir explosiones de supernova cercanas (del orden de 100 pc) capaces de producir el exceso de  $^{60}\text{Fe}$  observado en mediciones de corteza de ferromanganeso (Knie et al., 2004).



# 6

## Flujo de $^{53}\text{Mn}$

En este capítulo se describirá como, a partir de la medición de la relación  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  en una muestra de 1.400 kg de nieve antártica, fue posible determinar el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta.

### 6.1 Antecedentes

Existen sólo dos trabajos que han estimado el flujo de  $^{53}\text{Mn}$ . El primero fue realizado por Bibron et al. (1974) a través de mediciones en nieve antártica. Ellos reportaron un valor  $\Phi(^{53}\text{Mn}) = (18.400 \pm 4.200)$  átomos  $\text{cm}^{-2} \text{a}^{-1}$ . Las mediciones fueron realizadas por la técnica de activación neutrónica y espectroscopía de rayos X, analizando tres muestras de cientos de kilogramos cada una. En el segundo trabajo, llevado a cabo por Imamura et al. (1979), midieron el cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  en muestras de sedimentos submarinos, y determinaron que  $\Phi(^{53}\text{Mn}) = (1.950 \pm 840)$  átomos  $\text{cm}^{-2} \text{a}^{-1}$ . Las mediciones también fueron realizadas mediante la técnica de activación neutrónica, precedida en este caso de un procedimiento de enriquecimiento isotópico. Como puede verse, los dos valores preexistentes no son compatibles entre sí y sería de mucha utilidad contar con un nuevo valor que permita discernir entre ellos y en lo posible, utilizando una técnica diferente.

La técnica de activación neutrónica aplicada en estos dos trabajos consiste en producir  $^{54}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} = 312$  días) a partir de la captura de un neutrón por parte de los núcleos de  $^{53}\text{Mn}$  presentes en la muestra y detectar luego los fotones que emiten tras su decaimiento. Sin embargo, la producción de  $^{54}\text{Mn}$  a partir de las reacciones  $^{55}\text{Mn}(n, 2n)^{54}\text{Mn}$  y  $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$  impone un límite de detección. Estas reacciones son favorecidas por la presencia de neutrones rápidos en el flujo utilizado, razón por la cual es muy importante trabajar con neutrones térmicos y reducir mediante un tratamiento químico la concentración de  $^{54}\text{Fe}$  en la muestra a irradiar (Bibron et al., 1974).



## 6.2 Planteamiento del problema

Uno de los principales problemas que se enfrenta al determinar el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta es la diferencia que presenta con respecto al que se observa en la superficie terrestre. Debido a cuestiones propias del transporte atmosférico y la depositación, el flujo observado en un determinado sitio de muestreo sobre la superficie no es representativo del flujo global de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a la Tierra.

Para reducir las incertezas provenientes del hecho que los mecanismos de transporte y depositación no son aún entendidos con precisión, se utilizó el radionucleido  $^{10}\text{Be}$  como trazador atmosférico, desde que el  $^{53}\text{Mn}$  ingresa en la estratosfera hasta que llega a la superficie.

El  $^{53}\text{Mn}$  ingresa a nuestro planeta formando parte de partículas de polvo interplanetario (IDPs). El 90% de las IDPs son desintegradas por ablación antes de llegar a la estratosfera (ver figura 6.1). De este modo el  $^{53}\text{Mn}$  que transportaban pasa a formar parte de los aerosoles de la atmósfera que tienen un tiempo de residencia de 12 - 18 meses (Lanci et al., 2007, Plane, 2012). Por otro lado, el  $^{10}\text{Be}$  estratosférico, tiene un tiempo de permanencia en esta capa de la atmósfera de  $\sim 12$  meses (McHargue y Damon, 1991). Ambos se mezclan entonces durante al menos un año en la atmósfera, lo que hace válido suponer que queda garantizada su homogeneización. De este modo, el cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  en la estratosfera es aproximadamente constante alrededor del mundo.

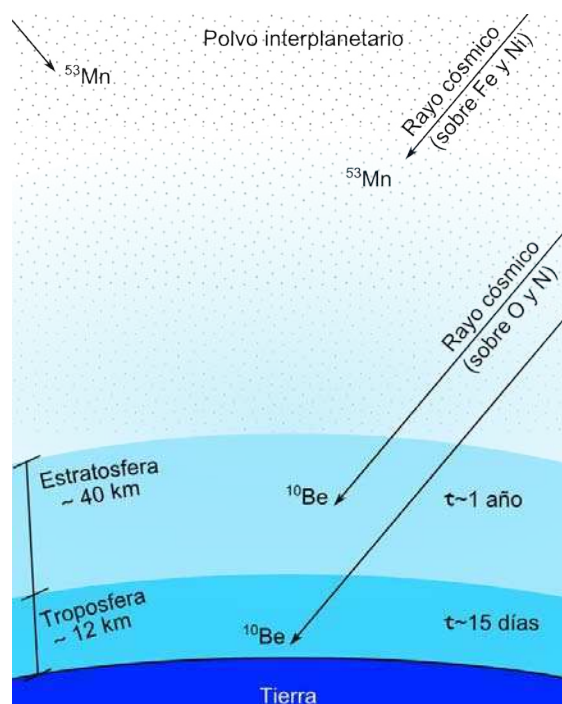
Esta suposición no es válida en la troposfera ya que allí el Be tiene un tiempo de permanencia de tan solo dos semanas (McHargue y Damon, 1991), insuficiente para homogeneizarse con el  $^{53}\text{Mn}$ . Bajo estas hipótesis, el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta puede ser determinado como:

$$\Phi(^{53}\text{Mn}) = \frac{^{53}\text{Mn}}{^{10}\text{Be}} \times D(^{10}\text{Be}) \quad (6.1)$$

utilizando la depositación de  $^{10}\text{Be}$  estratosférico  $D(^{10}\text{Be})$  y el cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  medido en la superficie terrestre.

Para calcular  $D(^{10}\text{Be})$  debe tenerse en cuenta las siguientes consideraciones. En primer lugar, si bien la producción global de  $^{10}\text{Be}$  es  $P(^{10}\text{Be}) = (6,6 \pm 0,8) \times 10^5$  átomos  $\text{cm}^{-2} \text{a}^{-1}$  (Masarik y Beer, 2009), la producción estratosférica corresponde a multiplicar este valor por  $f_e = 0,56 \pm 0,10$  (Masarik y Beer, 1999). En segundo lugar, debido a aspectos de la dinámica atmosférica (*e.g.* ruptura de la tropopausa a latitudes intermedias), la depositación de  $^{10}\text{Be}$  estratosférico se ve favorecida respecto del troposférico en el lugar de muestreo, resultando que una fracción  $f_d = 0,70 \pm 0,05$  del  $^{10}\text{Be}$  encontrado en superficie proviene de esta capa de la atmósfera (Heikkilä et al., 2009). Se tiene entonces que:

$$D(^{10}\text{Be}) = \frac{f_e}{f_d} \times P(^{10}\text{Be}). \quad (6.2)$$

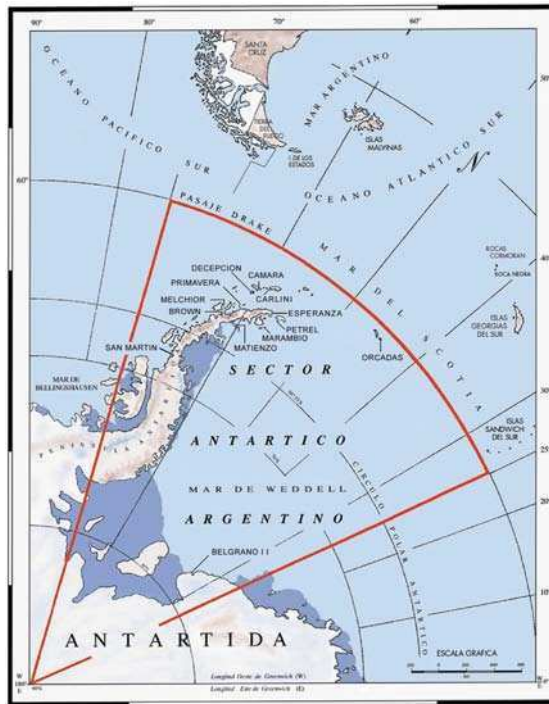


**Figura 6.1:** Representación de la formación de  $^{10}\text{Be}$  en la estratosfera y troposfera y del ingreso de  $^{53}\text{Mn}$  formado en las IDPs.

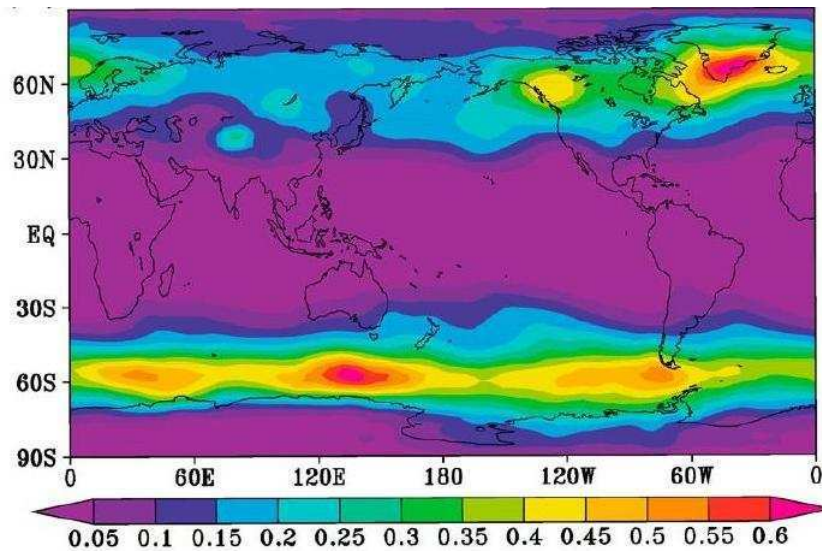
Evaluando esta expresión se obtiene que  $D(^{10}\text{Be}) = (5,2 \pm 1,2) \times 10^5$  átomos  $\text{cm}^{-2} \text{a}^{-1}$ . Los aspectos relativos a la medición del cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  ocuparán las secciones restantes de este capítulo.

### 6.3 Muestra: 1.400 kg de nieve antártica

La Antártida es un lugar ideal para la toma de una muestra que permita calcular la depositación de  $^{53}\text{Mn}$  extraterrestre y  $^{10}\text{Be}$  estratosférico sobre la superficie terrestre, ya que la concentración de la mayoría de los isótopos estables es menor en nieve de la Antártida que en muestras de otros continentes. Esto tiene dos ventajas, a saber: que la relación isotópica de los radionucleidos cosmogénicos no resulta fuertemente diluida por el isótopo estable, y que la concentración de los núcleos blanco (Fe y Ni) a partir de los cuales se produce el  $^{53}\text{Mn}$  por fragmentación es baja. En particular, la baja concentración de Mn ( $\sim 3$  ppb) permite la medición de la relación  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  que de otro modo sería imposible por encontrarse por debajo del límite de detección de la técnica de AMS (Poutivtsev et al., 2010).



**Figura 6.2:** Ubicación geográfica de la base Argentina Carlini en suelo Antártico. Mapa extraído de <http://www.dna.gov.ar/DIVULGAC/BASES.HTM>



**Figura 6.3:** Mapa de la depositación anual media de Fe en  $\mu\text{mol m}^{-2} \text{a}^{-1}$ . Extraído de Dhomse et al. (2013).

Para este estudio se recogieron 1.400 kg de nieve Antártica que al derretirse se transportaron en 7 tanques de 200 litros cada uno. La recolección de la muestra tuvo lugar en la base argentina Carlini (ex-base Jubany, ver mapa de la Figura 6.2) durante la expedición correspondiente al verano 2012 - 2013.

Otra razón para elegir este lugar de muestreo es que, la región en la que se encuentra recibe más polvo interplanetario en un factor  $f \sim 5,6$  que la media mundial, como se muestra en la figura 6.3 extraída de Dhomse et al. (2013). Cabe señalar además que la atmósfera de esta región se mantiene fuertemente desacoplada del hemisferio norte donde se encuentra la mayor cantidad de radionucleidos producidos en las pruebas nucleares atmosféricas.

Existe, sin embargo, un aspecto negativo de este lugar: si bien en la base Carlini la precipitación media ronda los 330 mm/a, también recibe neviscas provenientes del campo de hielo cercano donde las precipitaciones alcanzan los 5.000 mm/a (Rückamp et al., 2011). Una alta tasa de precipitaciones conlleva a una baja concentración de radionucleidos cosmogénicos, ya que la producción atmosférica y/o el ingreso a nuestro planeta de estos últimos es independiente de las precipitaciones. Por esta razón fue necesario un gran volumen de muestra de modo de asegurar una cantidad medible de los átomos de interés ( $\geq 10^7$ ), teniendo en cuenta la eficiencia de la técnica (sección 2.8). Como se verá más adelante, esta dilución es la responsable de que a pesar de haber tratado una muestra de 1.400 kg, la incerteza en el resultado final provenga esencialmente de la baja estadística de conteo de átomos de  $^{53}\text{Mn}$  durante las mediciones de AMS.

## 6.4 Procesamiento químico de la muestra

El primer paso para poder planificar el procesamiento químico de la muestra fue cuantificar la concentración de los elementos de interés presentes en ella. Para ello se realizaron mediciones por la técnica de ICP-MS sobre diferentes alícuotas de los 1.400 kg de nieve antártica. Los valores de concentración media obtenidos se presentan en la tabla 6.1.

A partir de estas concentraciones es inmediato calcular la cantidad de Mn y de Be en el total de la muestra, siendo 4,5 mg y 22  $\mu\text{g}$  respectivamente. De acuerdo con los resultados reportados en un trabajo previo (Auer, 2008), la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  esperada es del orden de  $\sim 10^{-14}$ . Por lo tanto, a pesar de contar con menos de 5 mg de Mn en la muestra, no se pudo agregar material portador para facilitar su extracción, ya que de hacerlo, su relación isotópica quedaría por debajo de los límites de detección de la técnica. Distinta es la situación para la relación isotópica esperada de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  ( $\sim 10^{-9}$ ) que si permitió el agregado de material portador ( $\sim 6$  mg), de otro modo, la extracción de los 22  $\mu\text{g}$  presentes hubiese sido imposible. El principal desafío químico fue entonces, extraer 4,5 mg de Mn y 6 mg de Be de un total de 1.400 litros de muestra.

**Tabla 6.1:** Concentraciones de diferentes elementos de interés medidas por la técnica de ICP-MS en cinco alícuotas diferentes de la muestra de 1.400 kg de nieve Antártica.

Elemento	Concentración (ppb)
Be	$0,016 \pm 0,002$
Al	$8,57 \pm 0,15$
Mn	$3,24 \pm 0,02$
Fe	$18,27 \pm 0,45$
Ni	$0,080 \pm 0,004$
Ca	$33,42 \pm 0,62$

El procedimiento químico realizado puede dividirse en tres grandes etapas:

1. Filtrado y acidificación.
2. Reducción del volumen de muestra.
3. Extracción y separación de cationes.

Los aspectos generales de cada una de estas etapas serán desarrollados en las siguientes subsecciones, mientras que los procedimientos detallados pueden encontrarse en el apéndice B.

#### 6.4.1 Filtrado y acidificación

Para filtrar los 1.400 litros de nieve antártica se utilizó la diferencia de presión hidrostática de 4 metros de altura. Para esto se construyó un sistema de cañerías que llevaba el agua desde un primer piso, donde se encontraban los 7 tanques de 200 litros cada uno, hasta la planta baja, donde se dispuso un filtro cilíndrico con poros de  $1\mu\text{m}$ . Cada uno de los tanques requirió aproximadamente 1 hora para ser filtrado.

Luego del filtrado, 7 litros de HCl calidad analítica marca Merk fueron mezclados con la muestra para llevar su concentración a  $\sim 0,05$  M. Esta es una condición necesaria para que, en la etapa siguiente, la resina de intercambio utilizada para concentrar la muestra retenga los cationes presentes en ella. Por último, antes de comenzar con la concentración de la muestra, se agregaron  $(5,96 \pm 0,02)$  mg de Be en calidad de portador utilizando una solución preparada con el mismo material que oportunamente se agregó en las cenizas volcánicas (tratado en las secciones 5.4.2 y 5.5.1), de relación isotópica  ${}^9\text{Be}/{}^{10}\text{Be} = (9,2 \pm 0,8) \times 10^{-15}$ . Para ello se diluyó una solución de concentración conocida, previamente determinada por la técnica de ICP-OES.



**Figura 6.4:** Sistema formado por 10 columnas con resinas de intercambio catiónico construido para reducir el volumen de muestra reteniendo los cationes de interés.

#### 6.4.2 Concentración de la muestra

Para concentrar la muestra se utilizaron resinas de intercambio iónico selectivas a determinados cationes. Estas resinas posibilitan la extracción de cationes de una solución que fluya a través de ella. Luego, utilizando ácidos en concentraciones adecuadas estos cationes pueden ser liberados de la resina por elución.

Se diseñó y fabricó un sistema de 10 columnas de intercambio catiónico de 5 cm de diámetro cada una y con 5 cm de resina, figura 6.4. Toda la muestra fluyó a través de estas 10 columnas en un lapso de tiempo total de 40 hs. El trabajo se realizó de forma ininterrumpida ya que las resinas no pueden deshidratarse en ningún momento.

Para llevar a cabo esta etapa se utilizó un montacargas colgante capaz de elevar los tanques de 200 litros por encima del sistema de columnas (parte superior izquierda de la figura 6.4), ya que regulando la altura de los tanques se pudo mantener constante la presión hidrostática que el agua ejercía y con ello el caudal. Esta es una condición necesaria para asegurar la correcta retención de los cationes en las resinas.

Luego de que toda la muestra fluyó a través de las resinas, utilizando 4 litros de HCl 6 M (calidad analítica marca Merck) se eluyeron los cationes en ellas retenidos. De este modo, la mayor parte de los cationes originalmente presentes en los 1.400 litros de muestra pasaron a formar parte de una solución de tan solo 4 litros de HCl. Mediciones realizadas por la técnica de ICP-OES sobre esta solución eluida confirmaron que el

rendimiento del proceso fue superior al 80 %.

Es importante señalar que la pérdida de átomos durante su procesamiento no conlleva a ningún tipo de error en la determinación final de la relación isotópica de los elementos de interés, ya que al perder muestra, se pierde en igual proporción el isótopo estable como del radionucleido que se quiere determinar. Esta es la razón principal por la cual el agregado de material portador (sólo Be en este caso) se realiza justo antes de iniciar el procedimiento. Luego de la elución, los 4 litros de solución fueron llevados a sequedad por evaporación.

### 6.4.3 Extracción de cationes

Esta tercera etapa del proceso, también puede ser a su vez dividida en tres partes:

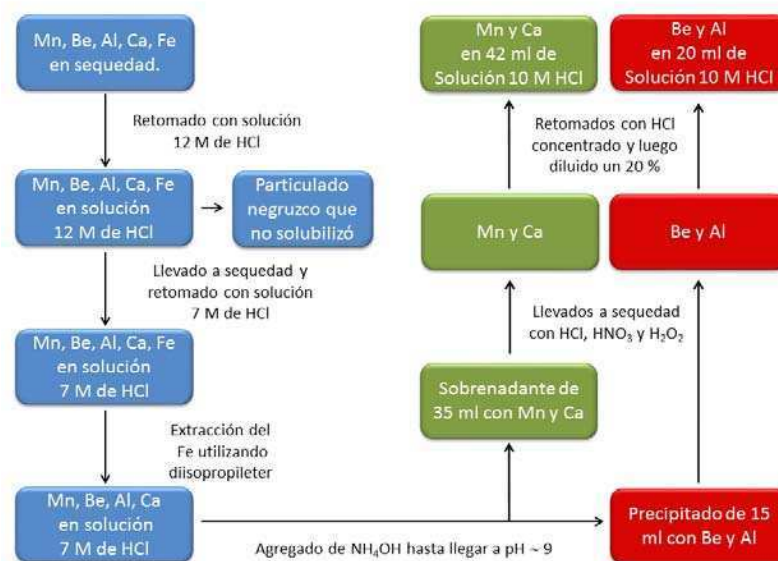
- Extracción del Fe con di-isopropil eter.
- División de la muestra en dos fases por precipitación.
- Extracción de Mn y Be de cada una de sus fases.

Las primeras dos etapas se resumen en el diagrama de la figura 6.5. Todo el material remanente luego de la evaporación, fue retomado con HCl concentrado. Sin embargo, a pesar de haber intentado llevar todo el material nuevamente a solución utilizando volúmenes de solución ácida que aseguraran la no saturación, una fracción de material de color negrozco no pudo ser disuelto. Teniendo en cuenta que en medio ácido, tanto el Be como el Mn permanecen en solución, esta fracción no disuelta fue descartada.

A continuación, se extrajo el Fe utilizando di-isopropil eter en relación 2:3 respecto de la solución con la muestra. La mezcla se realizó en ampollas de decantación para una correcta separación de las fases. De esta forma, el Fe pasa a la fase orgánica reduciéndose drásticamente su concentración en la solución ácida. Es posible incluso extraer los átomos de Fe de la fase orgánica mezclando esta última con H<sub>2</sub>O también en relación 3:2.

En este punto de la marcha se decidió dividir la muestra en dos fracciones mediante un precipitado en medio básico. De este modo, cada una de ellas contendría una menor cantidad de soluto y facilitaría la posterior extracción de los elementos mediante columnas de intercambio aniónico y catiónico. Para ello se agregó NH<sub>3</sub> en cantidad suficiente hasta llegar a pH  $\sim$  9. En este medio, los cationes de Be, Al, Ti y los de Fe remanentes precipitan como hidróxidos junto a otros elementos, quedando en solución los cationes de Mn, Ca, Ni entre otros.

En la tercera etapa, las marchas de separación de cationes continuaron de forma independiente retomando cada fase en HCl 10 M, como se indica en el último paso del diagrama de la figura 6.5. En adelante se trabajó de forma paralela sobre cada una de las fases utilizando columnas de intercambio aniónico y catiónico para la extracción del Mn



**Figura 6.5:** Marcha química realizada para separar la muestra concentrada en dos fracciones, una conteniendo esencialmente Mn y Ca, y la otra Be y Al.

y el Be con la misma técnica que oportunamente se aplicó a las muestras de sedimentos submarinos, esquematizada en la figura 4.5. Sin embargo, debido a la masa de cationes involucradas en este caso, todo el procedimiento debió ser escalado para no saturar las resinas, lo que hubiese reducido drásticamente su eficiencia de retención de cationes. Los detalles del procedimiento pueden encontrarse en el apéndice B.2.

Un aspecto de particular importancia en este proceso es la supresión química del isóbaro que interfiere durante las mediciones de AMS. En el caso del  $^{10}\text{Be}$ , el  $^{10}\text{B}$  es retenido por la columna de intercambio catiónico que se utiliza para separarlo del Al (ver figura 4.5). En el caso del  $^{53}\text{Mn}$ , el  $^{53}\text{Cr}$  se suprime con sucesivas precipitaciones del Mn utilizando la sal  $\text{KClO}_3$  (ver figura 4.5).

Finalmente, para transformar el hidróxido de Be en óxido y asegurar toda la oxidación del Mn, en un último paso antes de la confección del cátodo portamuestra, el material fue calcinado a alta temperatura ( $900\text{ }^\circ\text{C}$  durante dos horas).

## 6.5 Resultados experimentales

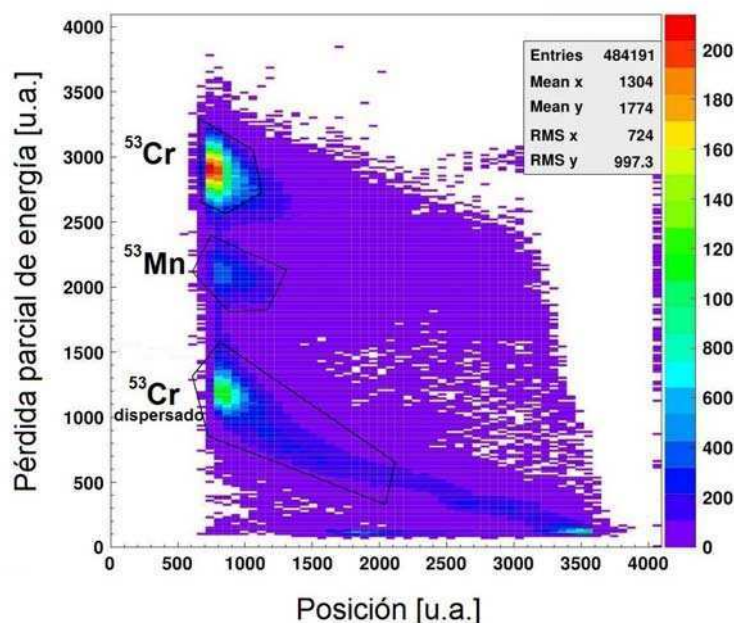
En esta sección se discutirán los resultados obtenidos al medir las relaciones isotópicas  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  y  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en las muestras preparadas a partir de la nieve antártica.



### 6.5.1 Ajuste de los parámetros del sistema

Para realizar las mediciones de la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  se utilizó el acelerador de 14 MV con que cuenta el *Maier Leibnitz Laboratorium* (MLL) en Garching, Alemania. Para una descripción detallada de la instalación ver el apéndice C.4. Esta es una de las dos instalaciones en el mundo capaz de realizar este tipo de mediciones, la otra se encuentra en Canberra, Australia (Gladkis et al., 2007).

Como ya fue discutido, el principal desafío para identificar partículas de  $^{53}\text{Mn}$  es la supresión de su isóbaro estable, el  $^{53}\text{Cr}$ . Dicha supresión se realiza en dos etapas, la primera es química (resinas y precipitación con  $\text{KClO}_3$ ) y la segunda física (técnica del imán lleno de gas). Para la supresión física, el MLL cuenta con un espectrómetro magnético denominado GAMS, que puede llenarse con gas (Knie et al., 1997), para aplicar la técnica de GFM descrita en la sección 3.5. Para la detección de los iones de interés, se utiliza una cámara de ionización de ánodo segmentado adosada a continuación del GAMS, en la que puede medirse la pérdida parcial de energía de las partículas y su posición relativa de ingreso a la cámara (proporcional a su radio de giro dentro del GAMS).

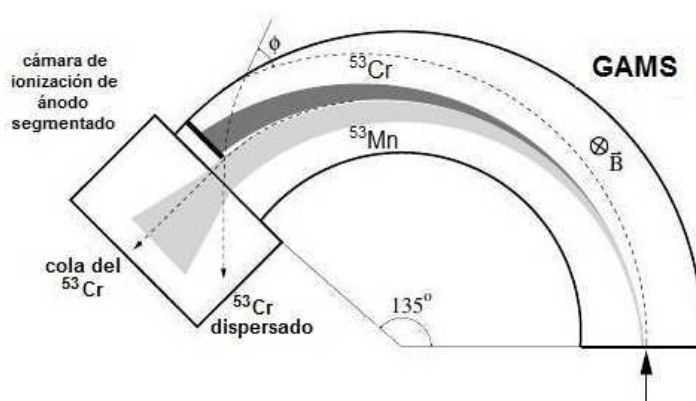


**Figura 6.6:** Espectro bidimensional de la pérdida parcial de energía perdida vs. la posición, obtenido con el sistema GAMS al sintonizar masa 53 sin aplicar ninguna condición en el sistema de adquisición.

Para identificar el  $^{53}\text{Mn}$ , se sintonizó el estado de carga  $q = 11+$  de un haz macroscópico de  $^{55}\text{Mn}$  a 140 MeV a través de todo el acelerador (lo que requiere una tensión de terminal

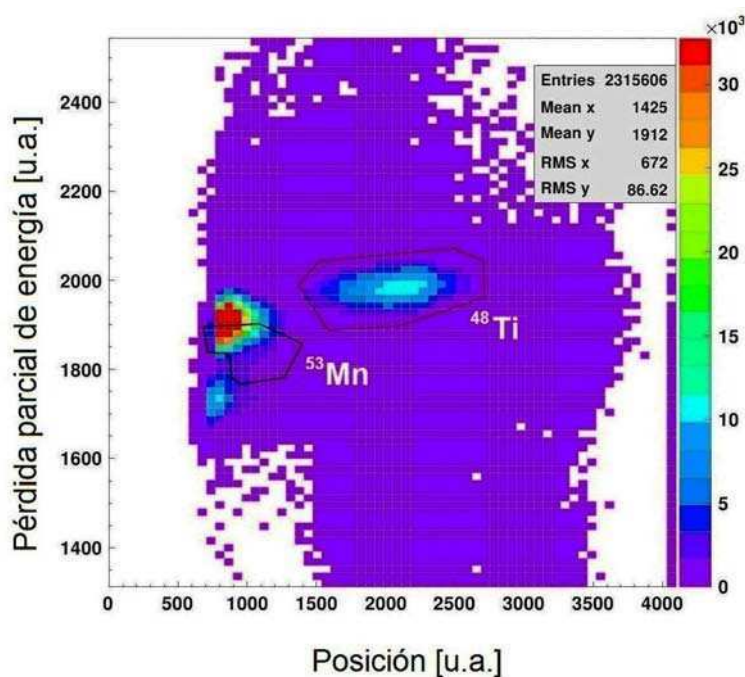
de 11,8 MV). La sintonización del haz microscópico de  $^{53}\text{Mn}$  se consiguió, para el mismo estado de carga, a una energía de 145 MeV con una tensión de terminal de 12,3 MV. En estas condiciones, un campo magnético de 800 mT fue necesario para curvar la trayectoria de las partículas adecuadamente dentro del GAMS. El gas utilizado en el espectrómetro fue  $\text{N}_2$  a una presión de 5,5 mBar y en la cámara de ionización posterior al GAMS se usó isobutano a una presión de 48 mBar. En esta instalación, el cambio de sintonización del isótopo estable al radionucleido se consigue modificando adecuadamente la tensión del terminal, el campo magnético del imán inyector, y el campo eléctrico en el filtro de Wien (sección 3.6). La forma en que se realizan los primeros dos cambios mencionados se describirá con detalle en la sección 10.4, ya que la misma metodología se aplicó para sintonizar  $^{10}\text{Be}$  con el acelerador TANDAR.

En la figura 6.6 se presenta un espectro característico durante una medición de  $^{53}\text{Mn}$ , obtenido con la cámara de ionización de ánodo segmentado adosada al sistema GAMS. La zona donde se espera el  $^{53}\text{Mn}$ , en estas condiciones, resulta imposible de diferenciar del fondo producido por las cuentas de  $^{53}\text{Cr}$ . En este espectro, se observa que el  $^{53}\text{Cr}$  aparece en dos regiones siendo la mayor parte suprimido por la ventana de entrada al detector. Estas dos regiones corresponden al  $^{53}\text{Cr}$  que fue dispersado en el gas y el que fue dispersado por colisiones con las paredes internas del espectrómetro como se esquematiza en la figura 6.7.



**Figura 6.7:** Esquema de las trayectorias seguidas por el  $^{53}\text{Mn}$  y el  $^{53}\text{Cr}$  en su paso por el GAMS hasta llegar a la cámara de ionización. Se describe la trayectoria de los iones de  $^{53}\text{Cr}$  dispersados.

No sólo el  $^{53}\text{Cr}$  consigue ingresar en el sistema de detección, sino también toda aquella partícula que posea la rigidez magnética adecuada. Tal es el caso del  $^{48}\text{Ti}$  que puede observarse en la figura 6.8. Si bien su masa es menor que la sintonizada, basta que en lugar de estado de carga  $q = 11$  (el sintonizado para la masa 53) tome el estado de carga  $q = 10$  para que su cociente masa carga ( $m/q = 48/10 = 4,8$ ) resulte similar al del  $^{53}\text{Cr}$  y  $^{53}\text{Mn}$  ( $m/q = 53/11 = 4,82$ ). Sin embargo, la presencia de este radionucleido no es



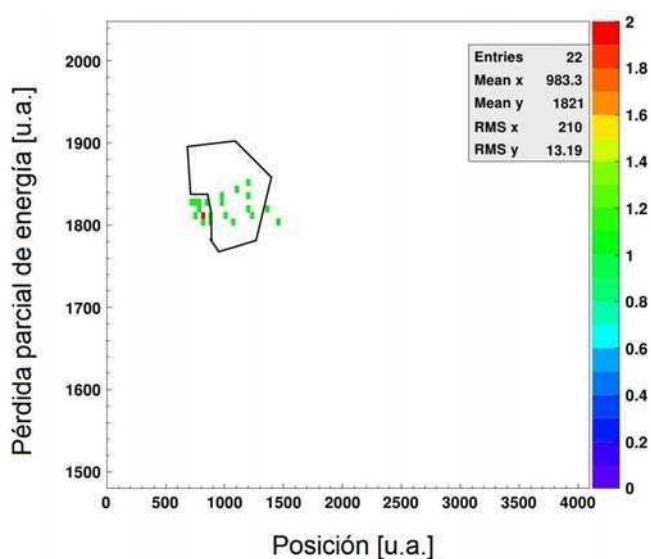
**Figura 6.8:** Espectro bidimensional de pérdida parcial de energía perdida vs. la posición en el que se evidencia contaminación con  $^{48}\text{Ti}$  en el material del cátodo.

problemática ya que su región en el espectro está claramente diferenciada de aquella donde se espera que aparezcan las cuentas de  $^{53}\text{Mn}$ .

### 6.5.2 Determinación del factor de supresión de $^{53}\text{Cr}$

Teniendo en cuenta que durante la medición de la muestra todo el  $^{53}\text{Cr}$  presente en el cátodo, es decir, todo aquel que no fue posible suprimir químicamente, tiene las mismas posibilidades de llegar hasta el sistema de detección que el radionucleido de interés, es importante imponer condiciones tanto en el GAMS como en el sistema de adquisición que reduzcan la probabilidad de contar iones de  $^{53}\text{Cr}$  como si fueran iones de  $^{53}\text{Mn}$ .

Para ello se utiliza un cátodo con material estándar de  $^{53}\text{Mn}$  y uno con  $^{55}\text{Mn}$  contaminado con  $^{53}\text{Cr}$  (típicamente 100 ppm) que puede considerarse un blanco en lo que se refiere a su concentración de  $^{53}\text{Mn}$ . Sintonizando  $^{53}\text{Mn}$  proveniente de ambos cátodos puede establecerse una región de interés (ROI) en los espectros en la cual se esperarán durante la medición de la muestra propiamente dicha, los eventos de  $^{53}\text{Mn}$ . La elección de esta ROI se realiza maximizando los eventos de  $^{53}\text{Mn}$  obtenidos al medir el material estándar (rico en  $^{53}\text{Mn}$ ) y minimizando el número de eventos de  $^{53}\text{Cr}$  al medir la muestra intencionalmente contaminada. Esto explica la forma de la ROI en el espectro de la figura 6.9 obtenido durante la medición de la muestra contaminada con cromo. Es importante



**Figura 6.9:** Espectro bidimensional de pérdida parcial de energía perdida vs. la posición realizado para estimar el fondo producido por las cuentas de  $^{53}\text{Cr}$ . Medición a partir de la cual es posible calcular el factor de supresión de  $^{53}\text{Cr}$ .

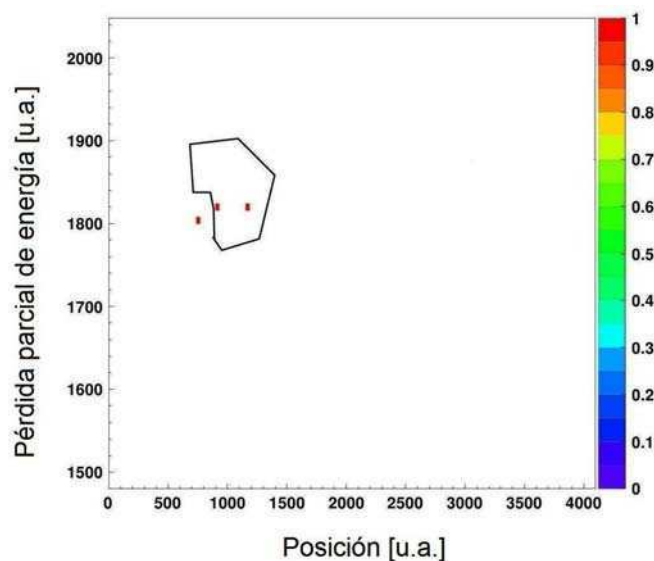
señalar que la elección de la ROI se realiza antes de medir la muestra propiamente dicha, utilizando sólo material estándar y la muestra contaminada con cromo.

A partir de la muestra contaminada con  $^{53}\text{Cr}$  fue posible determinar el factor de supresión del sistema como el cociente entre el número de iones de  $^{53}\text{Cr}$  en la ROI establecida para el  $^{53}\text{Mn}$  y el número total de iones de  $^{53}\text{Cr}$  en el espectro, resultando en  $1,1 \times 10^{-5}$ .

Este factor de supresión puede ser entendido como la probabilidad de que una partícula de  $^{53}\text{Cr}$  que ingresa al detector consiga sortear todas las condiciones impuestas por el sistema de adquisición generando señales que no puedan diferenciarse de las esperadas para un ion de  $^{53}\text{Mn}$  y por lo tanto, no pueda ser diferenciado de este último.

### 6.5.3 Medición de la relación isotópica $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$

Finalmente se comenzó con las mediciones para determinar la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  en el cátodo con la muestra propiamente dicha. La medición duró aproximadamente 3 hs hasta que la corriente que entregaba el cátodo en la fuente de iones resultó tan baja como para considerar despreciable la contribución estadística que podría hacer un haz tan poco intenso. El espectro que resultó de dicha medición se presenta en la figura 6.10. Como puede observarse, sólo 2 cuentas superan todas las condiciones impuestas por el sistema. Teniendo en cuenta el factor de supresión calculado previamente y la corriente durante la medición, fue posible calcular el fondo correspondiente a  $^{53}\text{Cr}$ , el cual resultó igual a 1,35



**Figura 6.10:** Espectro bidimensional de pérdida parcial de energía perdida vs. la posición, con los dos eventos observados en la región preestablecida para el  $^{53}\text{Mn}$  luego de 3 hs de medición hasta consumir el material del cátodo.

cuentas. A partir de este resultado, el valor obtenido para la relación isotópica medida fue  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} = 1,8_{-1,8}^{+5,8} \times 10^{-13}$ .

Por otra parte, considerando que la masa total de Mn en la muestra fue de 4,54 mg, y utilizando la relación isotópica medida, es fácil calcular la cantidad de átomos de  $^{53}\text{Mn}$  presentes en la muestra. Este resultado corresponde a  $89 \times 10^5$  átomos, con una cota superior de  $377 \times 10^5$  átomos.

#### 6.5.4 Medición de la relación isotópica $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$

La medición de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  se llevó a cabo con el acelerador SARA, del CNA en Sevilla, España. Para conocer los detalles de la instalación ver apéndice C.1. La técnica de medición utilizada fue la oportunamente desarrollada en la sección 3.3.

En esta instalación, el cambio del isótopo estable al radionucleido se realiza automáticamente modificando el campo eléctrico de un sistema ubicado delante del imán inyector. De este modo no es necesario modificar la tensión del terminal ni el campo del imán inyector. La corriente del isótopo estable se mide con una copa de Faraday fuera de línea.

La relación isotópica determinada para la muestra con  $(5,96 \pm 0,01)$  mg de material portador incluido resultó en  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (1,18 \pm 0,05) \times 10^{-11}$ , con lo cual, la cantidad de átomos de  $^{10}\text{Be}$  presentes en los 1.400 kg de nieve antártica fue de  $(4,7 \pm 0,2) \times 10^9$ .

## 6.6 Cálculo del flujo de $^{53}\text{Mn}$

Utilizando la cantidad total de átomos de  $^{10}\text{Be}$  y de  $^{53}\text{Mn}$  es posible calcular el cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$  en la muestra, lo que resulta en:

$$^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be} = 2_{-2}^{+6} \times 10^{-3}.$$

Reemplazando en la ecuación (6.1) el valor calculado para  $D(^{10}\text{Be})$  junto con el obtenido para el cociente  $^{53}\text{Mn}/^{10}\text{Be}$ , se obtiene finalmente para el flujo de  $^{53}\text{Mn}$ :

$$\Phi(^{53}\text{Mn}) = 1,2_{-1,2}^{+3,6} \times 10^3 \text{ átomos cm}^{-2} \text{ a}^{-1}.$$

La incerteza proviene esencialmente de la medición de la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$ . Dado que incrementar en un orden de magnitud el tamaño de la muestra ( $\sim 14.000$  kg) hace su tratamiento imposible, la opción mas viable en vistas de mejorar este resultado es tratar una muestra proveniente de un sitio donde la tasa de precipitaciones sea mucho menor. Esto permitirá que el aporte de las IDP no resulte tan diluido y tratando con una muestra incluso menor sería posible obtener una mejor estadística de conteo.

A pesar de su incerteza, el resultado obtenido excluye el valor previamente reportado por Bibron et al. (1974) igual a  $(18,4 \pm 4,2) \times 10^3 \text{ átomos cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ . Y por tratarse de un método completamente diferente al utilizado por Imamura et al. (1979) quien informó  $(1.950 \pm 840) \text{ átomos cm}^{-2} \text{ a}^{-1}$ , resulta auspicioso que ambos resultados sean compatibles.

Sobre la base de este resultado, entendido como una cota superior para el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que llega a nuestro planeta, en los próximos dos capítulos se dará una cota inferior para la distancia efectiva a un grupo de supernovas que ocurrieron cerca ( $\sim 100$  pc) de nuestro planeta hace 2,2 m.a. y una cota superior a la cantidad de polvo interplanetario que ingresa a nuestro planeta diariamente.



# 7

## Supernovas cercanas

En un trabajo publicado en 2004, Knie y colaboradores reportaron relaciones isotópicas  $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$  por encima del fondo natural en una muestra de corteza oceánica de ferromanganeso. Dado que el  $^{60}\text{Fe}$  se produce esencialmente durante explosiones de supernovas, estas mediciones significaron el hallazgo en nuestro planeta de núcleos de  $^{60}\text{Fe}$  eyectados en explosiones de supernovas cercanas. En este capítulo, utilizando el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  obtenido en el marco de estas tesis, se calculará la distancia efectiva a la cual debieron ocurrir estos eventos astrofísicos.

### 7.1 Escenario astrofísico

Nuestro sistema solar se encuentra ubicado en lo que se conoce como Burbuja Local. Se trata de una cavidad de baja densidad ( $\sim 0,005 \text{ cm}^{-3}$ ) de aproximadamente 150 pc de extensión.<sup>1</sup> Diferentes trabajos han sugerido que su formación se debe a la explosión de entre 10 y 20 supernovas durante los últimos 10 - 15 m.a. (Cox y Snowden, 1986, Smith y Cox, 2001, Maíz-Apellániz, 2001, Fuchs et al., 2006). En la figura 7.1 se muestra una representación esquemática de la Burbuja Local junto a otras burbujas cercanas.

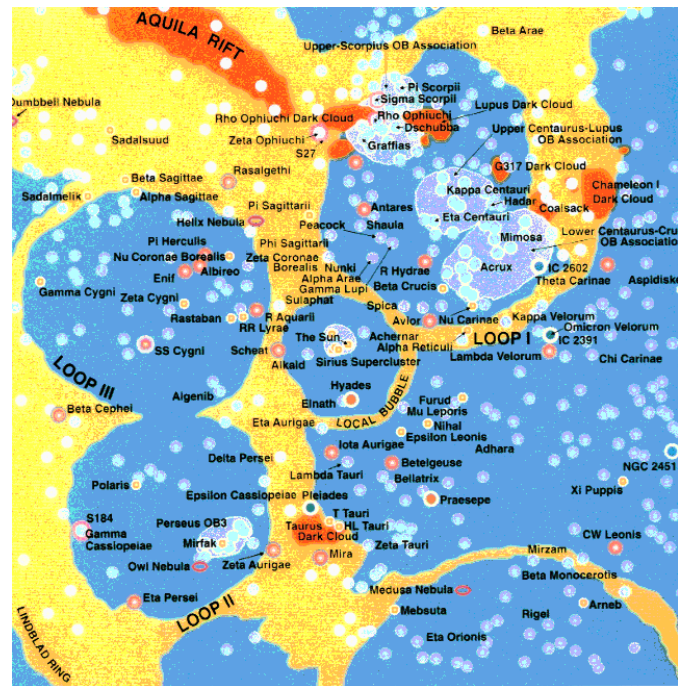
Reconstruyendo hacia atrás en el tiempo la posición de todas las asociaciones de estrellas OB<sup>2</sup> cercanas, Maíz-Apellániz (2001) han mostrado que la asociación Scorpio-Centauro es la única capaz de haber producido supernovas en la cantidad y posición adecuadas para generar la Burbuja Local.

---

<sup>1</sup>pc: parsecs, unidad equivalente a 3,2616 años luz, o bien,  $3,0857 \times 10^{16}$  m.

<sup>2</sup>Las estrellas OB son calientes y masivas de tipo espectral O o tipo B temprano que se encuentran asociadas en grupos. Poseen una corta vida, que termina en una explosión de supernova, y por lo tanto no consiguen alejarse mucho de su lugar de formación. Son grandes emisoras de radiación ultravioleta.





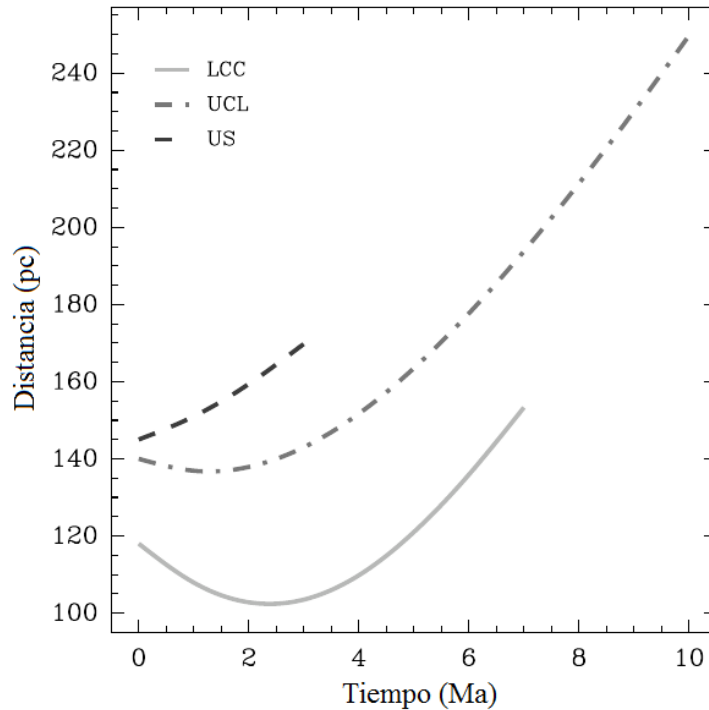
**Figura 7.1:** Representación esquemática de la Burbuja Local en la que se encuentra nuestro sistema solar. Extraído de <http://astronomy.stackexchange.com>.

Durante una explosión de supernova son producidas cantidades del orden de  $10^{-5}$  masas solares de  $^{60}\text{Fe}$  (Rauscher et al., 2002). En contraposición, este radionucleido es producido en cantidades muy pequeñas dentro de nuestro sistema solar por fragmentación inducida por rayos cósmicos. Las concentraciones más altas se registran en meteoritos, donde su relación isotópica  $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$  es del orden de  $10^{-14}$ . En nuestro planeta, debido al blindaje que la atmósfera ofrece al ingreso de rayos cósmicos, dicha relación es mucho menor. Por lo tanto, siendo extremadamente bajo el fondo de producción solar y terrestre, la detección de  $^{60}\text{Fe}$  en la Tierra es considerada una señal inequívoca de una explosión de supernova en la cercanía del sistema solar (Knie et al., 1997, 2004).

En varios trabajos realizados en el *Maier-Leibnitz Laboratorium*, se determinó la concentración de  $^{60}\text{Fe}$  en corteza oceánica de ferromanganeso. El primero de ellos fue publicado por Knie et al. (1999). En él reportaron un exceso de  $^{60}\text{Fe}$  en dos de las tres capas de corteza oceánica estudiadas, correspondientes a períodos de 0 - 2,8 m.a. y 3,7 - 3,9 m.a.

Tres años más tarde, Benítez et al. (2002) publicaron un artículo en el cual proponen supernovas candidatas a haber dado origen a estos núcleos de  $^{60}\text{Fe}$ . En la figura 7.2, se muestra la evolución de la distancia entre el Sol y el subgrupo Scorpio-Centauro durante los últimos 11 m.a. Como puede verse, el centro del subgrupo *Lower Centaurus Cruz*

(LCC) se encontró a menos de 120 pc de nuestro sol en los últimos 5 m.a., siendo la dispersión espacial de las estrelladas dentro de este grupo del orden de 25 - 30 pc.

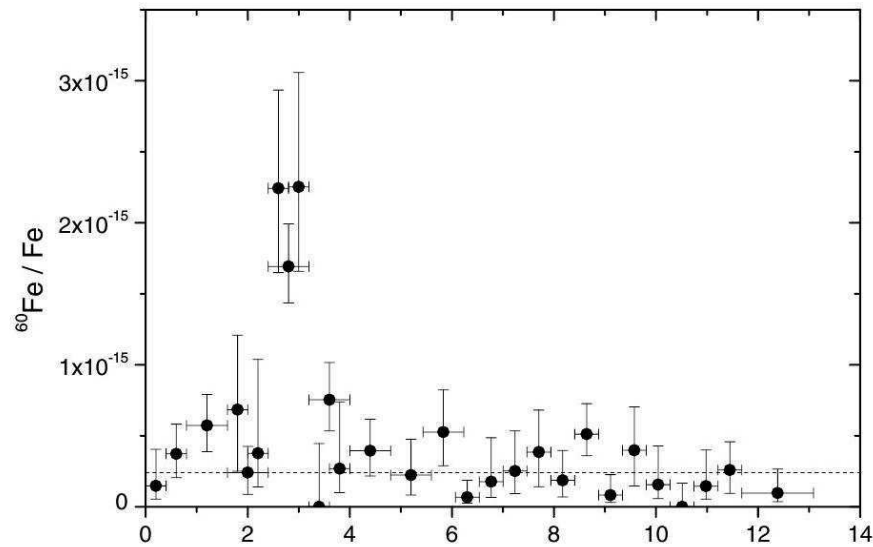


**Figura 7.2:** Evolución de la distancia total entre el Sol y el subgrupo Scorpio-Centauro durante los últimos 11 m.a. LCC: *Lower Centaurus Crux*; UCL: *Upper Centaurus Lupus* y US: *Upper Scorpius*. Extraído de Benítez et al. (2002).

Dos años después, Knie et al. (2004) volvieron a medir la relación isotópica  $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$  en otra muestra de corteza oceánica de ferromanganeso. Esta vez, dividieron la muestra en 28 capas paralelas al fondo submarino de espesores comprendidos entre 1 y 2 mm. De esta manera, mejoraron sustancialmente la resolución temporal de sus mediciones. La tasa de crecimiento de la muestra (lecho submarino) se determinó en 2,5 mm/m.a. a través del decrecimiento de la concentración de  $^{10}\text{Be}$ . Con esta información se pudieron datar las 28 capas de muestra estudiadas, cubriendo un período total de 13 m.a. El resultado obtenido para  $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$  se presenta en la figura 7.3. Como puede observarse, la concentración de  $^{60}\text{Fe}$  en las capas con edades comprendidas entre 2,4 y 3,2 Ma, resultó ser significativamente mayor al resto.

A partir de la concentración de  $^{60}\text{Fe}$  en la corteza oceánica, Knie y colaboradores han determinado su flujo en la corteza en

$$\Phi(^{60}\text{Fe})_{\text{Corteza}} = (2,9 \pm 1,0) \times 10^6 \text{ átomos cm}^{-2}.$$



**Figura 7.3:** Relación isotópica  $^{60}\text{Fe}/\text{Fe}$  en función de la edad de la capa de corteza oceánica de ferromanganeso en que fue medida. Extraído de Knie et al. (2004).

Es importante señalar que este valor fue calculado utilizando como período de semidesintegración para el  $^{60}\text{Fe}$  el valor  $T_{1/2} = (1,49 \pm 0,27) \times 10^6$  a (Kutschera et al., 1984). Sin embargo, el valor actualmente aceptado es significativamente diferente:  $T_{1/2} = (2,62 \pm 0,04) \times 10^6$  a (Rugel et al., 2009).

## 7.2 Consecuencias sobre el planeta Tierra

Por encontrarse nuestro sistema solar dentro de la Burbuja Local, el viaje hasta la Tierra de los rayos cósmicos eyectados durante una explosión de supernova cercana ocurre prácticamente sin obstáculos. El tiempo durante el cual estas partículas se depositan en la Tierra es muy difícil de precisar y solo se acotó en menos de  $10^5$  a (Benítez et al., 2002, Fitoussi et al., 2008).

Ruderman (1974) señaló que la radiación cósmica originada en explosiones de supernovas cercanas podrían ser capaces de remover temporalmente la mayor parte del ozono de la atmósfera terrestre, incluso cuando los efectos de dicha radiación sobre la superficie terrestre sean despreciables. Como consecuencia de la disminución del ozono en la atmósfera, la vida en la Tierra resultaría expuesta a altos flujos de radiación ultravioleta. Numerosos registros fósiles prueban que hace  $\sim 2,5$  m.a. ocurrió una masiva extinción en la biosfera marina tropical y subtropical, evento actualmente considerado el fin del Plioceno y el comienzo del Pleistoceno. Entre las explicaciones que se han dado a este fenómeno se encuentran: la aparición del istmo de Panamá (Allmon et al., 1993,

Jackson et al., 1993) y el enfriamiento global debido al comienzo de la glaciación en el hemisferio norte (Jackson et al., 1994). Sin embargo también, Benítez et al. (2002) han propuesto que la explosión de supernovas cercanas podrían ser las responsables de dicha extinción.

### 7.3 Modelo de distancia efectiva

Knie y colaboradores desarrollaron un simple modelo que les permitió estimar una distancia efectiva a la cual debió ocurrir una única explosión de supernova tipo II para explicar el exceso de  $^{60}\text{Fe}$  observado en la Tierra. Más allá de que los trabajos ya mencionados propusieron la ocurrencia de varias explosiones de supernovas cercanas, la estimación de una distancia efectiva a un único suceso de este tipo es suficiente para poder hacer inferencias sobre los efectos que tuvieron en la evolución de la biosfera terrestre.

En el modelo desarrollado para estimar una distancia efectiva, los autores calculan la fracción de Fe que efectivamente se absorbe en la corteza oceánica a partir de la correspondiente al Mn. Para ello calculan el cociente entre flujo de  $^{53}\text{Mn}$  en la corteza oceánica y el flujo global de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta. Este último parámetro es el que mayor incerteza introduce en el modelo, razón por la cual han oportunamente señalado la importancia de mejorar la determinación del flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta (Knie et al., 2004, Fitoussi et al., 2008). En las siguientes subsecciones se desarrollará el modelo para estimar dicha distancia.

#### 7.3.1 Eficiencia de asimilación de la corteza

De la totalidad de los átomos de  $^{60}\text{Fe}$  que llega a la superficie de los océanos, sólo una fracción  $F(^{60}\text{Fe})$  es incorporada en la corteza oceánica. Si bien dicha fracción no puede ser determinada directamente, puede calcularse utilizando mediciones de otro radionucleido, el  $^{53}\text{Mn}$ .

A partir de la determinación, también por la técnica de AMS, de la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  en las diferentes capas de corteza oceánica, Knie et al. (2004) determinaron el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  incorporado en la corteza, el cual resultó en:

$$\Phi(^{53}\text{Mn})_{\text{Corteza}} = 1,7 \times 10^8 \text{ átomos cm}^{-2} \text{ m.a.}^{-1}$$

Por otra parte, a partir del promedio de los flujos globales de  $^{53}\text{Mn}$  existentes entonces en la bibliografía (Bibron et al., 1974, Imamura et al., 1979), consideraron un flujo global de  $^{53}\text{Mn}$  igual a:

$$\Phi(^{53}\text{Mn}) = 4 \times 10^9 \text{ átomos cm}^{-2} \text{ m.a.}^{-1}$$

dividiendo estas últimas dos cantidades obtuvieron el factor de asimilación de Mn:

$$F(^{53}\text{Mn}) = 0,043.$$

Teniendo en cuenta la concentración de Fe y Mn en el agua del sitio donde se tomó la muestra, y las mismas concentraciones en la corteza oceánica, es posible relacionar sus respectivos factores  $F$  de la siguiente forma:

$$F(^{60}\text{Fe}) \frac{C_{\text{Fe, H}_2\text{O}}}{C_{\text{Fe, Corteza}}} = F(^{53}\text{Mn}) \frac{C_{\text{Mn, H}_2\text{O}}}{C_{\text{Mn, Corteza}}} \quad (7.1)$$

donde  $C_{\text{Fe, H}_2\text{O}} \simeq 0,6$  nmol/kg,  $C_{\text{Mn, H}_2\text{O}} \simeq 0,15$  nmol/kg para el lugar de muestreo y  $C_{\text{Fe, Corteza}} = 15$  % y  $C_{\text{Mn, Corteza}} = 26$  % para la corteza de ferromanganeso estudiada, de esta manera obtuvieron:

$$F(^{60}\text{Fe}) \simeq 0,006.$$

### 7.3.2 Ángulo sólido y depositación

En lo que al ángulo sólido se refiere, debe considerarse que el flujo de  $^{60}\text{Fe}$  que recibe la Tierra es cuatro veces mayor que el que se deposita en su superficie. Esto se debe a que mientras que la sección eficaz que ofrece nuestro planeta frente a la supernova es igual a  $\pi R_T^2$ , la superficie en que estos átomos finalmente se distribuyen es igual a  $4\pi R_T^2$ , con  $R_T$  el radio de la Tierra. Por lo tanto, el flujo total de  $^{60}\text{Fe}$  que llegó a nuestro planeta equivale a:

$$\Phi(^{60}\text{Fe}) = 4 \times \frac{\Phi(^{60}\text{Fe})_{\text{Corteza}}}{F(^{60}\text{Fe})} \quad (7.2)$$

lo que resulta en:

$$\Phi(^{60}\text{Fe}) = 2 \times 10^9 \text{ átomos cm}^{-2}.$$

Una supernova tipo II típicamente eyeecta  $2 \times 10^{-5}$  masas solares de  $^{60}\text{Fe}$  (Rauscher et al., 2002), lo que corresponde a  $4 \times 10^{50}$  átomos. Si se distribuyen estos átomos sobre una esfera de radio  $D$  (distancia Tierra-Supernova), el flujo en su superficie corresponderá a  $10^{50}$  átomos/ $(\pi D^2)$ . Por lo tanto, el flujo  $\Phi(^{60}\text{Fe})$  medido por Knie y colaboradores corresponde a una distancia media

$$D \simeq 40 \text{ pc.}$$

## 7.4 Nueva cota para la distancia efectiva

Si se utiliza la cota superior obtenida en este trabajo para el flujo de  $^{53}\text{Mn}$ :

$$\Phi(^{53}\text{Mn}) < 4,8 \times 10^9 \text{ átomos cm}^2 \text{ m.a.}^{-1}$$

se obtiene una fracción

$$F(^{53}\text{Mn}) > 0,035$$

que a través de la ecuación 7.1 corresponde a

$$F(^{60}\text{Fe}) > 0,005.$$

Por otra parte, a partir del valor reportado por Knie y colaboradores para  $\Phi(^{60}\text{Fe})_{\text{Corteza}}$  utilizado  $1,5 \times 10^6$  a como período de semidesintegración del  $^{60}\text{Fe}$ , puede calcularse el correspondiente al valor actualmente aceptado de  $2,6 \times 10^6$  a (Rugel et al., 2009). Además, una corrección del 60 % en la relación isotópica del estándar de  $^{60}\text{Fe}$  (PSI-12) fue recientemente informada. Aplicando todas estas correcciones se obtiene:

$$\Phi(^{60}\text{Fe})_{\text{Corteza}}^* = (2,5 \pm 0,9) \times 10^6 \text{ átomos cm}^{-2}.$$

Reemplazando ambos nuevos valores en la ecuación 7.2 se obtiene que el flujo total de  $^{60}\text{Fe}$  está acotado por

$$\Phi(^{60}\text{Fe})^* < (2,0 \pm 0,7) \times 10^9 \text{ átomos cm}^{-2}.$$

Esta cota superior en el flujo devuelve una cota inferior para la distancia efectiva a la explosión de supernova, igual a

$$D > 40 \text{ pc}$$

Por lo tanto, esta nueva estimación del flujo indica que el valor originalmente reportado por Knie et al. (2004) como distancia media debe ser en adelante entendido como una cota inferior. Esto se encuentra en mejor acuerdo con los cálculos realizados por Benítez et al. (2002) quienes estimaron  $D = (100 \pm 30) \text{ pc}$ .



# 8

## Afluencia de polvo interplanetario

En este capítulo se desarrolla un modelo de producción de radionucleidos en material extraterrestre para calcular la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  en polvo interplanetario. Luego, a partir del cociente entre el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  y su concentración en este material, se estima la cantidad que ingresa a nuestro planeta por año.

### 8.1 Origen, características y evolución

Las partículas de polvo interplanetario (IDPs) son producidas principalmente en la familia de asteroides Eos, Temis y Koronis que se encuentra en el cinturón de asteroides entre las órbitas de Marte y Jupiter (Kortenkamp y Dermott, 1998), mientras que una fracción menor al 25 % tiene su origen en el cinturón de Kuiper (a una distancia de 30 - 100 U.A.<sup>1</sup>) y durante la evaporación del material de los cometas que orbitan el Sol.

Estas partículas de polvo viajan hacia el Sol con trayectorias espiraladas como resultado de diferentes mecanismos, a saber: la atracción gravitatoria del Sol, la interacción con el viento solar, la presión de radiación ejercida por los fotones emitidos por el Sol, y una fuerza de arrastre producida por el corrimiento Doppler de la radiación térmica emitida por las partículas (efecto Poynting-Robertson; Robertson, 1937).

El tiempo que les toma a estas partículas llegar hasta la Tierra aumenta linealmente con el diámetro de las mismas. En la figura 8.1 se muestra la distribución de tamaño de las IDPs según el trabajo de Cremonese et al. (2012).

Diferentes estudios realizados sobre la composición química de las IDPs consideran que en buena aproximación puede considerarse similar a las condritas (Wasson y Kallemeyn, 1988, Brownlee et al., 1997, Palme y Jones, 2003). Por lo tanto, se componen esencialmente de O (47 %), Fe (18 %), Si (11 %), Mg (10 %), C (3 %), Al, Ca y Ni (1 %). Asimismo

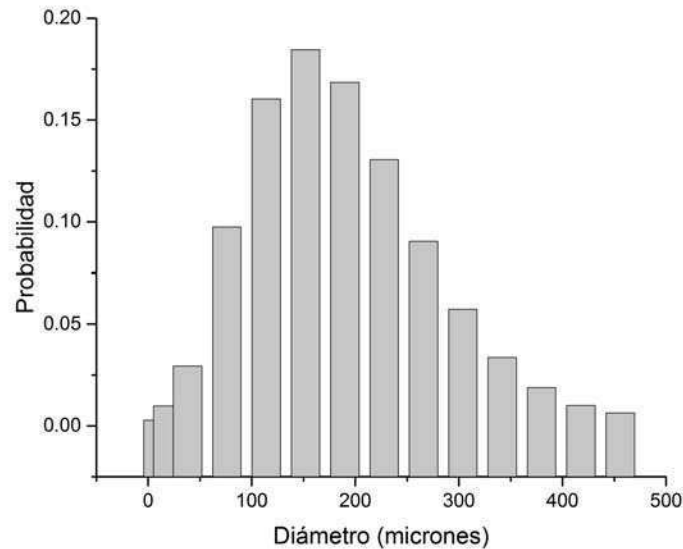
---

<sup>1</sup>Unidades Astronómicas, definida como la distancia media entre la Tierra y el Sol, equivalente a  $150 \times 10^6$  km.



contienen B, N, Na, K, y Ti en menor proporción. La densidad promedio se estima en  $2,5 \text{ g/cm}^3$ .

Durante su viaje hacia el Sol, las IDPs son bombardeadas por rayos cósmicos solares (RCS) y galácticos (RCG) que fragmentan sus núcleos constituyentes (reacciones denominadas *spallation*) creando radionucleidos exóticos.



**Figura 8.1:** Distribución de masas del polvo interplanetario que ingresa al planeta Tierra reportado por Cremonese et al. (2012).

Eventualmente, las IDPs pueden ingresar en la atmósfera terrestre, de hecho, nuestro planeta recibió desde su formación centenas de kilogramos de polvo interplanetario por metro cuadrado. A su paso por la atmósfera, aproximadamente el 90 % de las IDPs sufre un proceso de ablación entre los 85 km y 95 km de altitud, que da lugar a capas de átomos neutros (Plane, 2012). Estas capas se conforman por diferentes metales, algunos de ellos son: Fe, Mg, Ca, K y Na. Según los trabajos de Lanci y colaboradores (Lanci y Kent, 2006, Lanci et al., 2007), estos átomos se condensan en partículas nanométricas que llegan a la superficie terrestre principalmente a través de la deposición húmeda.

Para señalar la importancia que las IDPs tienen en la biosfera terrestre es interesante mencionar que se ha sugerido (Watson et al., 2000) que el aporte de Fe soluble (en la forma  $\text{Fe}_2\text{SO}_4$ ) que estas partículas condensadas hacen a los océanos es fundamental para el desarrollo de fitoplancton.<sup>2</sup> Si bien la cantidad de Fe que aportan es mucho menor que

<sup>2</sup>Conjunto de los organismos acuáticos autótrofos del plancton, que tienen capacidad fotosintética y

el proveniente de la erosión de los continentes, este último no es soluble fácilmente. La presencia de fitoplancton fue y sigue siendo crucial para la biosfera de nuestro planeta, ya que es el responsable original de la presencia de oxígeno y la reducción del dióxido de carbono en la atmósfera (Watson et al., 2000), y se encuentra en la base de la cadena alimentaria de los ecosistemas acuáticos.

## 8.2 Antecedentes

En los últimos años, muchos trabajos se han realizado con intenciones de establecer un valor cada vez más preciso para la cantidad de polvo interplanetario que ingresa a nuestro planeta diariamente (Gabielli et al., 2004, Lanci et al., 2007, Cremonese et al., 2012). Sin embargo, como ya se mencionó, el rango actual de valores reportados abarca de 5 a 270 t/día (Plane, 2012). Un resumen de los resultados más importantes obtenidos hasta la fecha se presenta en la tabla E del apéndice E. Observaciones de la nube Zodiacal y mediciones realizadas por exposición de larga duración (Love y Brownlee, 1993), reportaron un flujo  $\Phi = 100 - 300$  t/día. Estos resultados son consistentes con los obtenidos en mediciones realizadas en muestras de hielo antártico, hielo de Groenlandia, y en sedimentos marinos. Sin embargo, mediciones en la atmósfera media indican un ingreso de  $\Phi = 5 - 50$  t/día.

## 8.3 Planteamiento del problema

La mayoría de los radionucleidos formados por fragmentación nuclear inducida por rayos cósmicos en las IDPs no son adecuados como trazadores de estas partículas, ya que muchos de ellos son también producidos en la superficie de la Tierra por diferentes procesos nucleares naturales o bien en la atmósfera mediante el mismo mecanismo de fragmentación. Ejemplo de esto último es el  $^{26}\text{Al}$  que se produce por fragmentación de Ar en la atmósfera de nuestro planeta. Esta contribución resulta ser cuatro veces mayor que la realizada por IDPs. Otra importante fuente de radionucleidos es la actividad antropogénica, principalmente a través de las más de 2000 pruebas nucleares realizadas en los últimos 70 años.

El  $^{53}\text{Mn}$  cumple todas las condiciones necesarias para ser un buen trazador de las IDPs, ya que prácticamente no tiene contribución antropogénica, su producción *in situ* (Schaefer et al., 2006) no hace un aporte significativo y su período de semidesintegración ( $T_{1/2} = 3,7 \times 10^6$  a) es mayor que el tiempo de viaje estimado hasta llegar a la Tierra ( $\sim 10^5 - 10^6$  años dependiendo de su radio).

---

También se ha considerado el uso de  $^{41}\text{Ca}$  ( $T_{1/2}$  que viven dispersos en el agua. Forman parte de este grupo muchos seres tradicionalmente considerados algas.

=  $1,03 \times 10^5$  a) como trazador (Gómez-Guzmán et al., 2015), sin embargo, la relación isotópica esperada debido a la alta concentración de Ca sobre la superficie terrestre, se encuentra muy cerca del límite de detección de la técnica ( $\sim 10^{-15}$ ).

En este trabajo se estimó la cantidad de IDPs que ingresa a nuestro planeta por día a partir del flujo de  $^{53}\text{Mn}$  medido (capítulo 6) y su concentración  $C(^{53}\text{Mn})$  en las IDPs como indica la ecuación (8.1):

$$\Phi(\text{IDP}) = \frac{\Phi(^{53}\text{Mn})}{C(^{53}\text{Mn})} \frac{S_T}{365 \times 10^3} \quad (8.1)$$

donde  $S_T = 5,10 \times 10^{18} \text{ cm}^2$  es la superficie de la Tierra y  $C(^{53}\text{Mn})$  está calculada en átomos/kg.

La concentración de  $^{53}\text{Mn}$  en las IDPs fue calculada a partir de un modelo de producción que se desarrollará en las siguientes secciones.

## 8.4 Modelado de la producción de radionucleidos

Como se ha mencionado, la producción de radionucleidos en material extraterrestre se debe a la interacción de rayos cósmicos de alta energía que pueden clasificarse en solares (RCS) y galácticos (RCG). Los RCS, compuestos en un 98 % por protones, dominan el rango de energía hasta los 200 MeV. Los RCG en cambio, compuestos en un 87 % de protones, 12 % de partículas  $\alpha$  y 1 % de núcleos más pesados, son la principal componente desde las centenas de MeV hasta algunos GeV. Debido a su rango de energía, la irradiación producida por RCS sobre material extraterrestre tiene efecto sólo en las capas externas, mientras que los RCG penetran más profundamente, siendo responsables de los radionucleidos formados en el seno de los meteoroides.

En las IDPs, por tratarse de objetos con radios menores a los  $250 \mu\text{m}$  (Cremonese et al., 2012), puede considerarse que tanto los RCS como los RCG dan lugar a una tasa de producción homogénea en volumen (Trappitsch y Leya, 2013). En otras palabras, la energía que los rayos cósmicos pierden al atravesar estas partículas no es suficiente como para considerar cambios en las secciones eficaces de producción. En meteoroides con al menos algunos centímetros de diámetro, los neutrones secundarios producidos por rayos cósmicos consiguen termalizarse dando lugar a la formación de radionucleidos por captura neutrónica (Leya et al., 2000). En partículas pequeñas, con menos de  $500 \mu\text{m}$  de espesor, los neutrones no llegan a termalizarse, por lo tanto este efecto es despreciable en IDPs.

La concentración  $N(t)/M$  de radionucleidos que se forman en las IDPs es bien descripta por la ecuación diferencial (8.2),

$$\frac{1}{M} \frac{dN(t)}{dt} = P_G(t) + P_S(t) - \frac{\lambda}{M} N(t), \quad (8.2)$$

donde  $N(t)$  es el número de átomos del radionucleido de interés a tiempo  $t$ ,  $\lambda$  es su constante de decaimiento,  $M$  la masa de material considerado y  $P_G(t)$  y  $P_S(t)$  la producción por kilogramo de material debido a RCG y RCS respectivamente.

#### 8.4.1 Producción de $^{53}\text{Mn}$ debida a rayos cósmicos galácticos

La tasa de producción de  $^{53}\text{Mn}$  debida a RCG que impactan sobre Fe fue estudiada a través de simulaciones numéricas por Reedy (1989), quien reportó un valor de 558 dpm/kg(Fe). Asumiendo para las IDP la misma composición de las condritas CI, la concentración de Fe equivale a 0,184 g/g. Por lo tanto, la tasa de producción debida a RCG para este radionucleido en IDP resulta<sup>3</sup>  $P_G = 102,7$  dpm/kg.

Si bien este valor fue calculado a 1 U.A., en una buena aproximación pueden considerarse constante durante todo el viaje que realizan las IDP desde su formación hasta llegar al planeta Tierra. Esto equivale a considerar que el flujo de RCG dentro del sistema solar no depende fuertemente de la distancia al Sol como si sucede con los RCS.

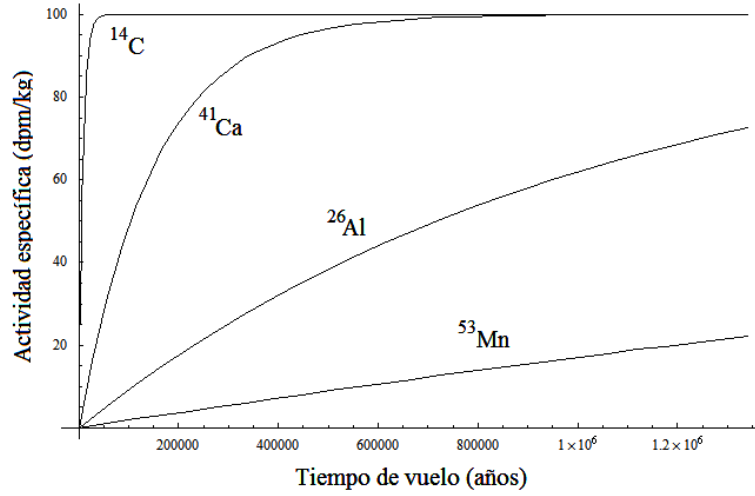
Si se fija  $P_S(t) = 0$ , la ecuación 8.2 tiene solución analítica, y esta es:

$$\frac{N(t)}{M} = \frac{P_G}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}), \quad (8.3)$$

como puede verse, esta función tiene un límite asintótico igual a  $P_G/\lambda$ , esto significa que para tiempos grandes ( $t \gg T_{1/2}$ ), la tasa de desintegraciones tiende a igualar a la tasa de producción inducida por RCG y la concentración del radionucleido se mantiene constante (equilibrio secular). Este comportamiento puede apreciarse en el gráfico de la figura 8.2 donde se graficó la actividad específica ( $\lambda N(t)/M$ ) en función del tiempo para diferentes radionucleidos:  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} \sim 5.730$  a),  $^{41}\text{Ca}$  ( $T_{1/2} \sim 0,103 \times 10^6$  a),  $^{26}\text{Al}$  ( $T_{1/2} \sim 0,717 \times 10^6$  a) y  $^{53}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} \sim 3,7 \times 10^6$  a). Para hacerlo se consideró un mismo valor  $P_G = 100$  dpm/kg para todos ellos.

Es importante señalar que en los tiempos involucrados para el viaje de las IDPs desde el cinturón de asteroides hasta la Tierra, radionucleidos con períodos de semidesintegración mayores a  $\sim 0,5 \times 10^6$  años no consiguen llegar al equilibrio secular.

<sup>3</sup>Si bien dpm es una unidad de actividad que significa *desintegraciones por minuto*, en este contexto se utiliza para referir a *creaciones por minuto*.



**Figura 8.2:** Actividad específica de diferentes radionucleidos creados por RCG en función del tiempo. Para todos ellos se consideró  $P_G = 100$  dpm/kg.

Debido a la relación entre su período de semidesintegración y el tiempo total de vuelo, el  $^{53}\text{Mn}$  no alcanza el equilibrio secular, esto hace que el resultado final de su concentración resulte más sensible a los parámetros del modelo. La incerteza en el tiempo total de vuelo se propaga casi linealmente a su concentración, mientras que en radionucleidos de corto período de semidesintegración, que alcanzan el equilibrio secular, prácticamente no tienen efecto alguno. Como se verá más adelante, este efecto que aquí se presenta como una desventaja del modelo, será una ventaja cuando se estime la producción debida a RCS.

#### 8.4.2 Producción de $^{53}\text{Mn}$ debida a rayos cósmicos solares

Suponiendo un flujo isotrópico de RCS, la tasa de producción  $P_S(t)$  de  $^{53}\text{Mn}$  puede considerarse proporcional a  $1/a(t)^2$ , donde  $a(t)$  es la distancia orbital de las IDPs medida desde el Sol en función del tiempo, ecuación 8.4.

$$P_S(t) = P_0 \left( \frac{a_e}{a(t)} \right)^2, \quad (8.4)$$

Aquí,  $P_0$  es la tasa de producción del radionucleido en cuestión por kilogramo de material debido a la interacción de RCS a una distancia  $a_e = 1$  U.A.

La tasa de producción  $P_0$  fue calculada para diferentes radionucleidos en IDPs en un trabajo recientemente publicado por Trappitsch y Leya (2013). Para hacerlo, utilizaron simulaciones numéricas en las que han tenido en cuenta las pérdidas por núcleos en retroceso que podrían ser expulsados de la IDP luego de la fragmentación nuclear inducida

por rayos cósmicos. Como resultado, Trappitsch y Leya han observado que este efecto es relevante en partículas con radios menores a  $10 \mu\text{m}$ . El valor que reportan para la tasa de producción de  $^{53}\text{Mn}$  por kilogramo de IDP a 1 U.A. asumiendo que su composición es equivalente a la de condritas CI, es  $P_S = 963 \text{ dpm/kg}$  (para el parámetro del modelo  $R_0 = 125 \text{ MeV}$ .)

**Trayectoria de las IDP** Para calcular la distancia orbital  $a(t)$  es necesario conocer la trayectoria que las IDPs realizan en su caída hacia el Sol. Para ello, debe tenerse en cuenta su interacción con RCS y con los fotones del Sol. Estos últimos no sólo ejercen una presión de radiación radial, sino que además transfieren energía a la partícula que al ser reemitida como radiación térmica sufre el efecto Doppler debido a la velocidad de la partícula (Kortenkamp y Dermott, 1998). Este último mecanismo, conocido como efecto Poynting-Robertson (Robertson, 1937) es de hecho tres veces más importante, en lo que se refiere a la fuerza de arrastre que sienten las partículas, que el producido por la interacción de los protones que conforman el viento solar. Ambos mecanismos disipan energía y momento de la partícula. Como consecuencia su trayectoria hacia el Sol resulta espiralada. La ecuación de movimiento para partículas esféricas es la de una órbita heliocéntrica espiralada dada por la expresión (8.5):

$$\frac{da(t)}{dt} = -\frac{k}{a \rho r} \quad (8.5)$$

donde  $k$  es una constante del modelo con valor  $6,6 \times 10^{11} \text{ g/s}$ ,  $\rho$  es la densidad de las IDPs y  $r$  su radio (Burns et al., 1979).

Integrando la ecuación (8.5) se puede obtener una expresión para el tiempo de viaje de una IDP que se origina a una distancia  $a_0$  hasta que llega a una distancia  $a(t)$ , lo que resulta en:

$$t = [a_0^2 - a(t)^2] \frac{\rho r}{2k} \quad (8.6)$$

$a_0$  puede evaluarse considerando que las IDPs en su mayoría se originan en la familia de asteroides Eos, Temis y Koronis que se encuentran en el cinturón de asteroides a  $3,0 \pm 0,3 \text{ U.A.}$  (Kortenkamp y Dermott, 1998). Y si se evalúa la expresión (8.6) en  $a(t) = 1 \text{ U.A.}$  se obtiene el tiempo que tardan en llegar a la Tierra como función de su radio  $r$ .

**Resolución de la ecuación diferencial** Con lo discutido hasta aquí, la ecuación (8.2) puede reescribirse despejando  $a(t)$  de (8.6) y reemplazándolo en (8.4), y de esta manera:

$$\frac{1}{M} \frac{dN(t)}{dt} = P_G + P_0 \left( \frac{a_e^2}{a_0^2 - \frac{2k}{\rho r} t} \right) - \frac{\lambda}{M} N(t) \quad (8.7)$$

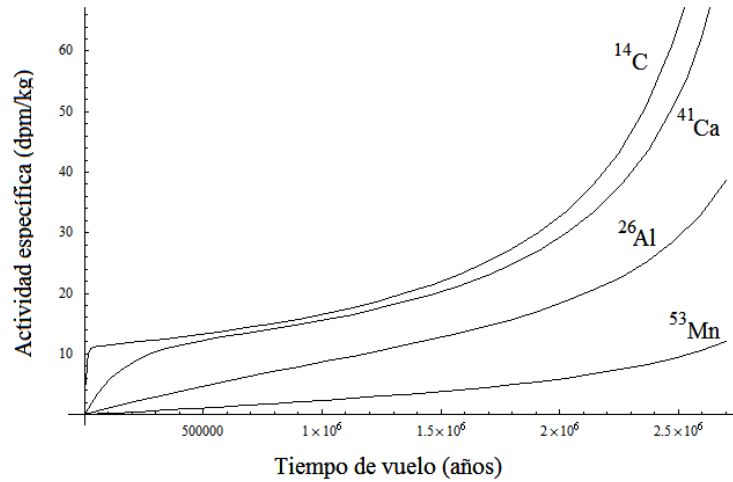
La solución a esta ecuación diferencial es:

$$\frac{N(t)}{M} = \frac{P_G}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}) + P_0 \left(\frac{a_e}{a_0}\right)^2 \tau e^{\lambda(\tau-t)} (E_i[-\lambda\tau] - E_i[-\lambda(\tau-t)]) \quad (8.8)$$

donde  $\tau = a_0^2 \rho r / 2k$ , equivale al tiempo de vuelo de una IDP de radio  $r$  desde su origen en  $a_0$  hasta el Sol y  $E_i(z)$  es la función integral definida de la siguiente manera:

$$E_i(z) = - \int_{-z}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t} dt. \quad (8.9)$$

Si se fija  $P_G = 0$  en la ecuación 8.8, es posible estudiar como aumenta la concentración de radionucleidos debido a la producción de RCS. En la figura 8.3 se graficó la actividad específica en función del tiempo para diferentes radionucleidos:  $^{14}\text{C}$  ( $T_{1/2} \sim 5.730$  a),  $^{41}\text{Ca}$  ( $T_{1/2} \sim 0,103 \times 10^6$  a),  $^{26}\text{Al}$  ( $T_{1/2} \sim 0,717 \times 10^6$ ) y  $^{53}\text{Mn}$  ( $T_{1/2} \sim 3,7 \times 10^6$  a). Para hacerlo se consideró para todos ellos un mismo valor  $P_S = 100$  dpm/kg. Como puede verse, en este caso no se alcanza un equilibrio entre producción y decaimiento como sí sucede si se consideran sólo los RCG. Esto se debe a que el flujo de RCS no es constante sino que, conforme las partículas se acercan a la Tierra, el flujo de RCS aumenta con la inversa del cuadrado de la distancia al Sol.

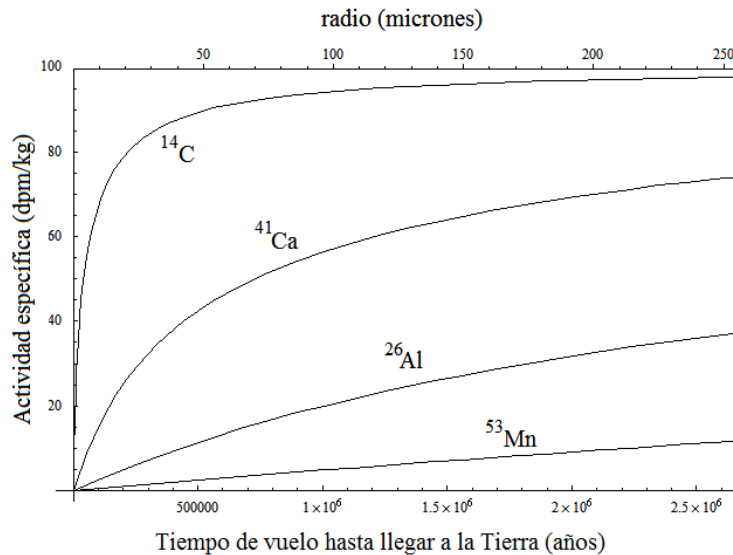


**Figura 8.3:** Actividad específica de diferentes radionucleidos creados por RCS en función del tiempo. Para todos ellos se consideró  $P_S = 100$  dpm/kg.

Puede verse como, en este caso, las concentraciones de los radionucleidos de mayor período de semidesintegración son menos sensibles al tiempo total de vuelo hasta llegar a la Tierra. En este sentido, que el período de semidesintegración del  $^{53}\text{Mn}$  sea significativamente superior al tiempo total de vuelo hace que su concentración debido a RCS sea menos sensible que la de aquellos radionucleidos con menor período de semidesintegración. Basta señalar el caso del  $^{14}\text{C}$  donde puede verse, en la figura 8.3, que la incerteza en el tiempo total de vuelo se propaga casi cuadráticamente a la incerteza en su concentración.

## 8.5 Cálculo de la concentración de $^{53}\text{Mn}$ en polvo interplanetario

En la figura 8.4 se graficó la actividad específica de cada radionucleido en las IDPs al momento de arribo a nuestro planeta en función del tiempo total de viaje desde el cinturón de asteroides. Este tiempo total de viaje, como ya se ha señalado, es proporcional al radio de las partículas que también se ha indicado en el eje superior.



**Figura 8.4:** Actividad específica de diferentes radionucleidos en las IDP al llegar a la Tierra en función del tiempo total de viaje y su radio. Para todos ellos se consideró  $P_0 = P_G = 50$  dpm/kg.

Se cuenta entonces con la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  con que arribará a la Tierra una IDP en función de su radio. Y se conoce además la probabilidad  $P(r)$  de que una IDP de radio  $r$  ingrese a nuestro planeta (figura 8.1). Es posible entonces calcular la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  por kilogramo de IDP de la siguiente manera:

$$C(^{53}\text{Mn}) = \sum_r P(r) C_r(^{53}\text{Mn}) \quad (8.10)$$

En la tabla E.1 del apéndice E se presenta cada término de esta sumatoria, indicando radio, masa y probabilidad de ingreso de las IDPs como así también su tiempo total de vuelo y la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  al llegar a la Tierra.

De esta manera se obtuvo que la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  por kilogramo de IDP equivale a  $C(^{53}\text{Mn}) = 1,9 \times 10^{14}$  átomos/kg, o bien  $C(^{53}\text{Mn}) = 68$  dpm/kg.<sup>4</sup> Un 72 % formados por RCS y el 28 % restante por RCG.

<sup>4</sup>No se deben confundir estas concentraciones con tasas de producción también indicadas en dpm/kg.



## 8.6 Cuantificación del polvo interplanetario

Evaluando la ecuación 8.1 se obtiene que la cantidad de polvo interplanetario que llega a nuestro planeta por día equivale a:

$$\Phi(\text{IDP}) = 90_{-90}^{+270} \text{ t/día.}$$

Nuevamente este resultado establece una cota, en este caso superior, de 360 t/día o equivalentemente, 130 kt/a (Rodrigues et al., 2016b). Es importante señalar que el método utilizado en esta tesis para cuantificar el ingreso de polvo interplanetario se diferencia de todos los previamente reportados en la literatura. Sin embargo, el valor obtenido es compatible con los actualmente discutidos por la comunidad científica trabajando en este tema (enumerados en la tabla del apéndice E).

Parte IV

AMS con el acelerador TANDAR



Esta cuarta parte se divide en dos capítulos. En el capítulo 9 se hace una breve descripción del acelerador TANDAR y del estado previo a este trabajo de la técnica AMS en esta instalación. Se describen las dificultades que presenta la implementación de esta técnica en un acelerador con las características del TANDAR, y se resumen además los antecedentes existentes en experimentos previamente realizados con intenciones de implementar la técnica. En el capítulo 10 se describen las tareas realizadas en el marco de esta tesis doctoral para la identificación del radionucleido  $^{10}\text{Be}$  y la medición de su relación isotópica respecto del  $^9\text{Be}$  mediante la técnica AMS con el acelerador TANDAR. Esto incluye la forma en que se produjeron patrones de diferente relación isotópica, el diseño y construcción de un absorbente pasivo para eliminar la interferencia isobárica de  $^{10}\text{B}$ , y los procedimientos de medición utilizados. Finalmente, se calcula la sensibilidad alcanzada, suficiente para realizar en nuestro país las mediciones de  $^{10}\text{Be}$  requeridas en los estudios sobre los que versó esta tesis doctoral.



# 9

## Estado previo de la técnica AMS en el Acelerador TANDAR

Este capítulo comienza con una descripción general del acelerador TANDAR. Continúa con un breve resumen de las tareas tendientes a la implementación de la técnica de AMS en nuestro país realizadas hasta el comienzo de este trabajo doctoral. Se resumen luego las ventajas y desventajas que se presentan a la hora de utilizar un acelerador con las características del TANDAR para aplicar esta técnica.

### 9.1 El acelerador TANDAR

El TANDAR es un acelerador electrostático tipo tándem de 20 MV de tensión nominal fabricado por la *National Electrostatics Corporation* (NEC). Se encuentra emplazado en el predio del Centro Atómico Constituyentes de la Comisión Nacional de Energía Atómica. La disposición del acelerador (fuente de iones, pre-aceleración y tanque de aceleración de 35 metros) es vertical y su estructura es una torre de hormigón de 72 metros de altura. En la figura 9.1 se presenta un esquema de la instalación.

La fuente de iones negativos actualmente en uso es una SNICS-II, también fabricada por la NEC, con 40 posiciones para cátodos. El mecanismo para la producción de iones es el *sputtering* producido por cationes de  $\text{Cs}^+$ . Los principios generales de su funcionamiento fueron explicados en la sección 2.4.

Al nivel del suelo y justo debajo del tanque de aceleración se encuentra el imán analizador. Este imán puede rotar en el plano horizontal, direccionando los haces hacia las diferentes líneas experimentales.

Desde la fuente de iones hasta el final de cada línea experimental se encuentran numerosas bombas de vacío, mecánicas, iónicas y turbo moleculares. Con ellas, la línea de transporte del haz alcanza presiones típicas del orden de  $10^{-7}$  bar e incluso menores en ciertas regiones.

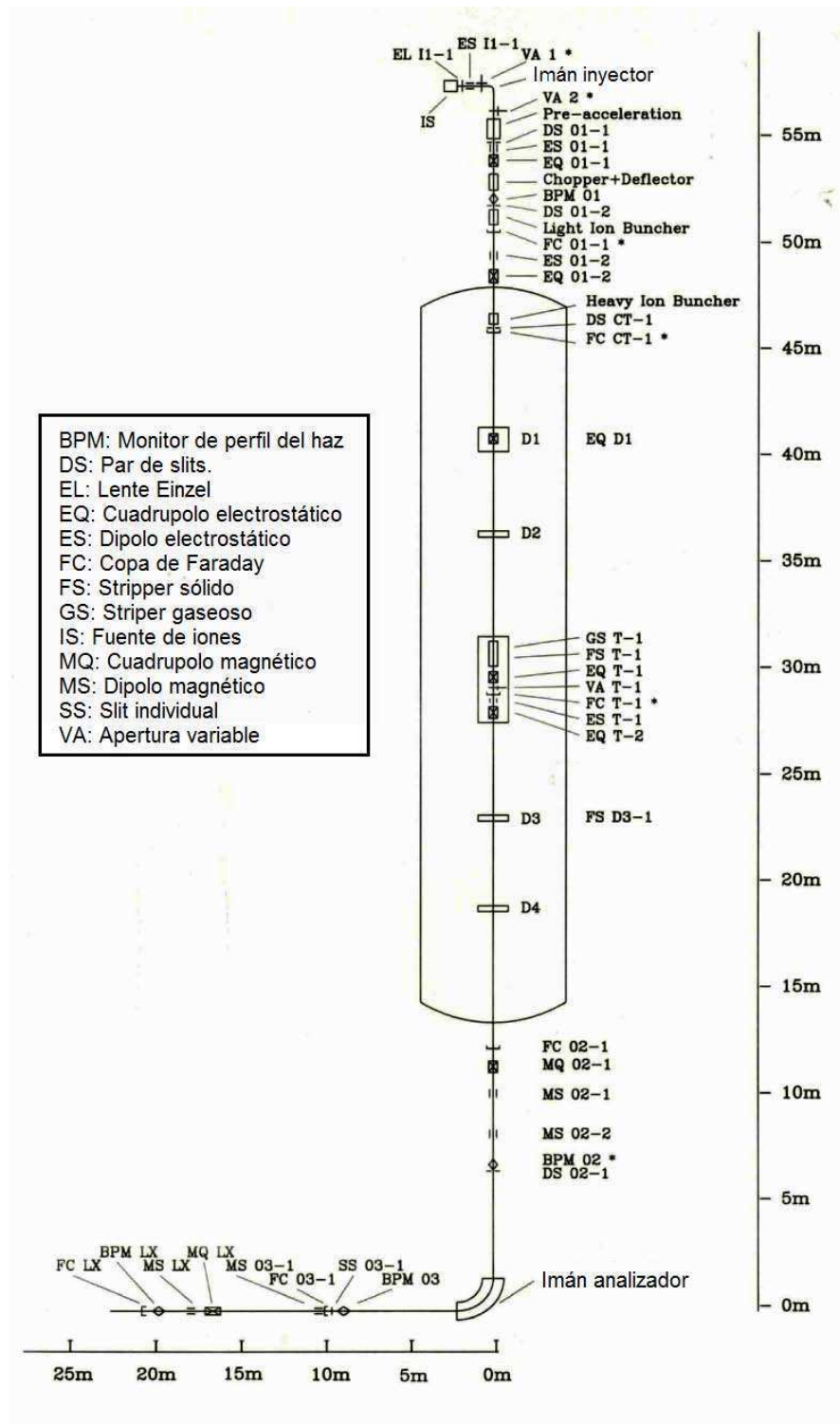


Figura 9.1: Esquema del acelerador TANDAR de 20 MV de tensión de nominal.

El transporte de los haces se consigue mediante instrumentos ópticos, dipolos y cuadrupolos tanto eléctricos como magnéticos, dispuestos a lo largo de toda la máquina. En la zona de baja energía, todos los elementos ópticos (con excepción del imán inyector) son eléctricos, mientras que en la zona de alta energía, donde la velocidad de las partículas es mayor, son todos magnéticos.<sup>1</sup>

El mecanismo de aceleración empleado fue descrito en la sección 2.5. Puede resumirse en un terminal a alta tensión hasta el cual se aceleran los iones negativos producidos en la fuente de iones, allí pierden electrones debido a su interacción con el *stripper*<sup>2</sup> y siendo ahora iones positivos son nuevamente acelerados desde el terminal a alta tensión hasta la salida del tanque de aceleración que, al igual que la entrada, se encuentra a potencial de tierra.

Para aislar eléctricamente el terminal y evitar que se descargue, todo el tanque se encuentra lleno de una mezcla de gas dieléctrico, hoy en día conformado aproximadamente por un 90 % por N<sub>2</sub> y el 10 % restante de SF<sub>6</sub>. Durante períodos de mantenimiento este gas se transfiere a dos esferas que se encuentran fuera del edificio (ver figura 9.2).



**Figura 9.2:** Fotografía del acelerador TANDAR.

---

<sup>1</sup>Recientemente fue adquirido un filtro de velocidades, o Filtro de Wien de la firma Danfysik. Este dispositivo será el único elemento eléctrico en la zona de alta energía.

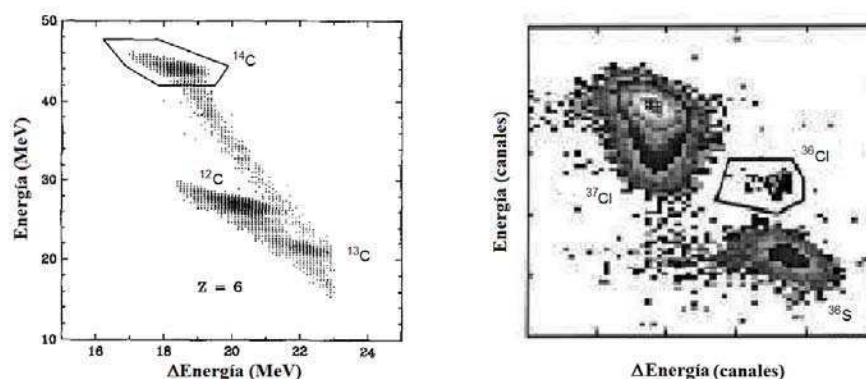
<sup>2</sup>El TANDAR puede utilizar *stripper* sólido, gaseoso o ambos a la vez.



En cuanto al sistema de transporte del haz, el acelerador dispone de tres monitores del perfil del haz (BPM). Cuenta además con seis copas de Faraday (FC) para medir la corriente del haz. La primera de ellas, FC-01, está ubicada justo después del imán inyector. Más adelante en el camino del haz, y justo antes de la entrada al tanque de aceleración se encuentra la FC-CT. En el terminal de alta tensión se encuentra FC-T1 (fuera de operación al momento de los experimentos). A la salida del tanque y antes del imán analizador se encuentra la FC-02 y justo después del imán analizador la FC-03. Por último, al final de la línea experimental se encuentra la FC-línea.

## 9.2 Antecedentes

En los últimos 20 años en el Laboratorio TANDAR se han realizado varios experimentos tendientes a la implementación de la técnica de AMS. Los primeros trabajos se llevaron a cabo con el radioisótopo  $^{14}\text{C}$ , el más sencillo de cuantificar por esta técnica ya que su isóbaro estable, el  $^{14}\text{N}$ , no forma iones negativos estables en la fuente de iones (Middleton, 1990). En esos primeros experimentos, para facilitar la identificación del  $^{14}\text{C}$ , se utilizó material artificialmente enriquecido, es decir, con una alta relación isotópica  $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ .



**Figura 9.3:** Espectros bidimensionales obtenidos con un detector telescopio  $\Delta E - E_R$ . En el espectro del panel izquierdo se puede identificar  $^{14}\text{C}$ , extraído de Fernández Niello et al. (1996); mientras que en el panel de la derecha se puede identificar  $^{36}\text{Cl}$  y su isóbaro estable el  $^{36}\text{S}$ , extraído de Fernández Niello et al. (2000).

Las mediciones realizadas mostraron una buena discriminación cualitativa del  $^{14}\text{C}$  respecto de su isótopo estable  $^{12}\text{C}$ , como puede verse en el panel izquierdo de la figura 9.3 (Fernández Niello et al., 1996, Alvarez et al., 1997).

Pocos años más tarde, se consiguió discriminar el radionucleido  $^{36}\text{Cl}$  respecto de su isóbaro estable el  $^{36}\text{S}$ , pero sin poder cuantificar relaciones isotópicas (Fernández Niello

et al., 2000). El espectro bidimensional obtenido se presenta en el panel derecho de la figura 9.3. Si bien estos trabajos fueron pioneros en nuestro país y demostraron el potencial del acelerador TANDAR para la implementación de la técnica, mucho trabajo quedó por delante tanto para poder realizar mediciones cuantitativas, como para extender este tipo de mediciones a otros radionucleidos de interés.

### 9.3 Marco de implementación

La implementación de la técnica de AMS depende drásticamente dos factores, a saber: el radionucleido cuya relación isotópica se quiere determinar pues, como se ha discutido en el capítulo 3, cada uno de ellos presenta un desafío particular que conduce a la aplicación de diferentes sistemas de detección; y las características del acelerador en que se lleve a cabo, ya que la máxima tensión del terminal, los instrumentos ópticos y de selección, determinarán que técnicas de discriminación e identificación pueden ser aplicadas.

En el marco de esta tesis doctoral, se decidió trabajar en la implementación de la técnica de AMS para el radionucleido  $^{10}\text{Be}$ . Esta decisión se sustenta básicamente en dos razones: capitalizar la experiencia adquirida en las mediciones realizadas en las diferentes instalaciones del exterior y, contar en nuestro país con una herramienta que permita desarrollar investigaciones de interés geofísico como las desarrolladas en esta tesis.

La identificación y cuantificación del radionucleido  $^{10}\text{Be}$  es ciertamente más compleja que la del  $^{14}\text{C}$  debido a la presencia de su isóbaro estable, el  $^{10}\text{B}$ . Al mismo tiempo es más simple que la del radionucleido  $^{53}\text{Mn}$ , ya que la diferencia relativa en el número de protones del  $^{10}\text{Be}$  ( $z = 4$ ) y del  $^{10}\text{B}$  ( $z = 5$ ) es  $1/4$ , mientras que entre  $^{53}\text{Mn}$  y  $^{53}\text{Cr}$  (su isóbaro estable) es de tan solo  $1/24$ . Se puede decir entonces que la dificultad para determinar la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  puede considerarse intermedia, siendo de hecho factible en modernas máquinas pequeñas de 0,6 - 3 MV de tensión de terminal (Chamizo et al., 2008b, Müller et al., 2010).

Utilizar el acelerador TANDAR, de 20 MV de tensión nominal, para la determinación de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ , ofrece ventajas y desventajas comparativas respecto de las máquinas más pequeñas que actualmente se diseñan para este fin. La principal ventaja es que, como ya se ha discutido en la sección 3.4, gracias a las energías que el acelerador TANDAR es capaz de imprimirle a las partículas es posible la completa supresión del isóbaro que interfiere,  $^{10}\text{B}$ . Incluso la discriminación de las interferencias que no son completamente suprimidas es más sencilla cuanto mayor es la energía de las partículas que llegan al detector. Por otro lado, el acelerador TANDAR tiene por diseño las características necesarias para una potencial identificación por AMS de radionucleidos tales como  $^{60}\text{Fe}$ ,  $^{53}\text{Mn}$  o  $^{93}\text{Zr}$ . Estos radionucleidos requieren la supresión de sus respectivos isóbaros mediante la aplicación de la técnica de GFM (imán lleno

con gas) y la medición de pérdidas parciales de energía. Para esto es necesaria una alta energía que potencialmente puede lograrse con el acelerador TANDAR y un espectrómetro magnético con el que también cuenta la instalación. Asimismo, su gran imán analizador con  $(B\rho)_{\max}^2 = 500 \text{ uma MeV/e}^2$ , permite sintonizar iones pesados con bajos estados de carga que son los de mayor rendimiento al utilizar *stripper* gaseoso. La principal desventaja es que las mediciones de concentraciones extremadamente bajas requieren de una estabilidad de la máquina en su conjunto que resulta difícil de conseguir con el acelerador TANDAR. Además, la transmisión de las partículas es típicamente menor que en las máquinas pequeñas diseñadas para la aplicación de esta técnica, lo que conlleva a una disminución de la corriente al final de la línea y por lo tanto de la eficiencia.

Para alcanzar sensibilidades del orden de  $10^{-14}$  es fundamental contar con corrientes del orden de las centenas de nanoAmpère al final de la línea de transporte del haz, de otro modo, la determinación de la relación isotópica de interés podría demandar días de medición siempre bajo estrictas condiciones de estabilidad. Una baja transmisión conlleva una baja eficiencia total (en el sentido discutido en la sección 2.8), lo cual puede resultar crítico cuando se dispone de una limitada cantidad de muestra.

## 9.4 Iones espurios y sus efectos en AMS

Gracias a la disposición de un numeroso conjunto de bombas iónicas y turbo moleculares a lo largo de todo el acelerador, la presión dentro del tubo de aceleración alcanza valores de hasta  $10^{-8}$  bar. Sin embargo, existe una probabilidad (del orden de  $10^{-5}$ ) de que una partícula del haz sufra una colisión en la que intercambie electrones con alguna molécula del gas remanente cambiando su estado de carga durante la región de aceleración.

Esta colisión de intercambio de electrones (a mayor velocidad es más probable que el ion acelerador pierda electrones) implica un cambio en la energía final con que llegará al imán analizador, ya que en la ecuación (2.5) se asume que el intercambio de carga ocurría sólo en el terminal de alta tensión.

Entre todos los intercambios de carga posibles existen aquellos que ocurren justo en el lugar del tanque de aceleración tal que una partícula adquiere la energía final necesaria para compensar (en el sentido de la ecuación (2.4)) su diferencia de masa o carga respecto de la partícula sintonizada. Debido a este fenómeno, partículas indeseadas que satisfagan la ecuación (2.4) (misma rigidez magnética) pueden doblar en el imán analizador y pasar por las ranuras selectoras. Si bien estos eventos son poco probables, al estar el haz conformado por una cantidad del orden de  $10^{11}$  partículas por segundo (50 nA con  $q = 3$ ), los mismos pueden volverse apreciables (Fernández Niello et al., 2004).

Puede suceder también que este fenómeno ocurra con partículas que no han sido intencionalmente sintonizadas en el imán inyector, ya que la tolerancia del imán hace

posible el ingreso de partículas de masa cercana a aquellas para las cuales su rigidez magnética fue fijada. Tal es el caso del ingreso de moléculas de  ${}^9\text{BeO}^-$  que tiene lugar cuando el imán inyector se sintoniza para que doblen correctamente moléculas de  ${}^{10}\text{BeO}^-$ .

Este fenómeno también tiene lugar cuando se sintonizan haces macroscópicos (de elementos abundantes en el cátodo y con buena producción de corriente en la fuente de iones). Sin embargo en estos casos la existencia de estos iones espurios no es un problema ya que su aparición puede despreciarse frente al haz sintonizado. En mediciones de AMS estos iones espurios sí pueden convertirse en un gran problema ya que su tasa de conteo en el detector podría ser similar o superior a la del radionucleido de interés.

Si además la energía, masa y número de protones del ion espurio no difieren lo suficiente de la partícula que se quiere identificar, estos pueden convertirse en las principales interferencias durante la medición, limitando el nivel de sensibilidad o mínima relación isotópica medible que se pueda lograr.



# 10

## Implementación

Con el fin de disponer en nuestro país de una instalación capaz de llevar a cabo mediciones como las requeridas en las investigaciones sobre las que versó esta tesis doctoral, parte de las tareas realizadas estuvieron dirigidas a la implementación de la técnica de AMS en el acelerador TANDAR de la CNEA.

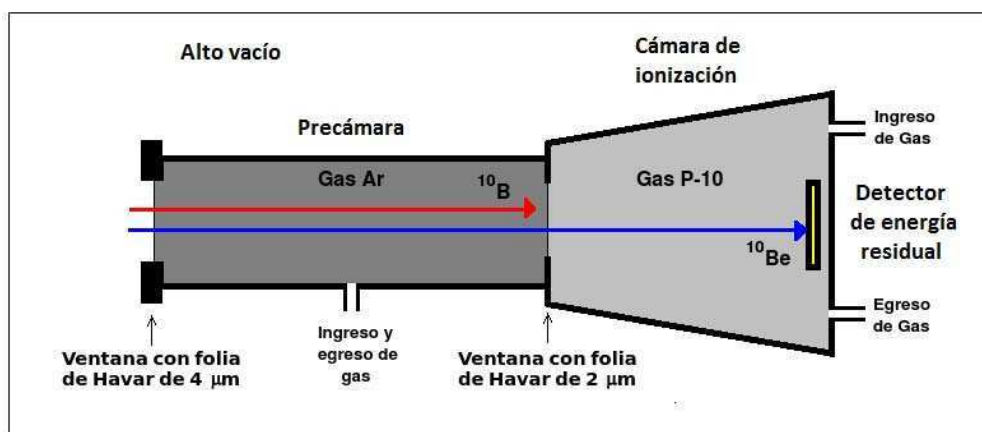
### 10.1 Diseño y construcción de un absorbente pasivo

El  $^{10}\text{B}$  es un elemento estable, con una abundancia relativa del orden de  $10^{-5}$  en la superficie terrestre. Por lo tanto, los materiales de interés tendrán cantidades macroscópicas de  $^{10}\text{B}$  y a pesar su supresión durante el procesamiento químico, seguirá encontrándose en el material de la muestra en cantidades al menos tres órdenes de magnitud mayores que el  $^{10}\text{Be}$ . En estas condiciones, el flujo de  $^{10}\text{B}$  podría dañar el detector y/o volver imposible la identificación del  $^{10}\text{Be}$ . Esto hace necesaria la implementación de una técnica de medición capaz de reducir significativamente el  $^{10}\text{B}$ .

El  $^{10}\text{B}$ , tiene la misma masa y puede tener el mismo estado de carga que su isóbaro el  $^{10}\text{Be}$ , por lo tanto, al sintonizar  $^{10}\text{Be}$  en un acelerador, el  $^{10}\text{B}$  no puede ser suprimido por ninguna combinación de campos eléctricos y magnéticos.

Como se explicó en la sección 3.4, con las energías disponibles en el acelerador TANDAR, es posible el frenado completo del isóbaro  $^{10}\text{B}$  sin comprometer la identificación del  $^{10}\text{Be}$ . Para ello se diseñó y construyó un absorbente pasivo compuesto por una precámara con gas que se colocó delante de una cámara de ionización (detector descrito en la sección 3.2) como se muestra en el esquema de la figura 10.1. De este modo, el  $^{10}\text{B}$  fue completamente detenido en el gas de la precámara, mientras que el  $^{10}\text{Be}$  con menor poder de frenado (por contar con un protón menos) consigue ingresar en la cámara de ionización, atravesar el gas P-10 y llegar a un detector de barrera de superficie donde se mide su energía residual. Si el conteo en este detector superara las miles de cuentas por segundo, la corriente de fuga generada podría aumentar hasta alcanzar valores que

terminarían dañando el detector. Asimismo, una alta tasa de conteo introduciría un tiempo muerto excesivo que impediría la detección del  $^{10}\text{Be}$  de interés. Esta es una razón instrumental por la cual el  $^{10}\text{B}$  debe ser detenido en la precámara, ya que dependiendo de la corriente de  $^9\text{Be}$ , y la concentración de boro en el material con que se prepararon los cátodos, su tasa de conteo podría oscilar entre  $10^4 - 10^5$  partículas por segundo cuando se sintoniza  $^{10}\text{Be}$ .

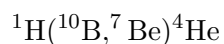


**Figura 10.1:** Esquema del detector utilizado para las mediciones de  $^{10}\text{Be}$  con el acelerador TANDAR.

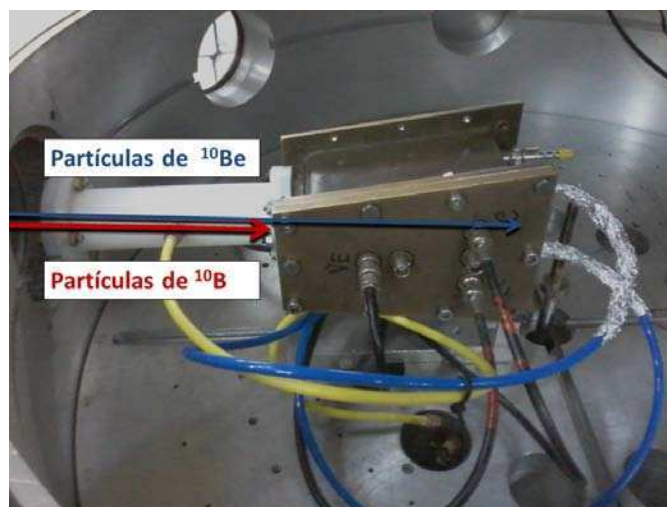
La precámara fue diseñada con simetría axial y con la mayor longitud posible compatible con las dimensiones de la cámara de reacciones (multipropósito) preexistente donde luego debía ser ubicado todo el sistema.

Esta condición fue impuesta para reducir al mínimo la presión en su interior, de modo tal que el material utilizado como ventana tuviese que resistir el menor esfuerzo posible. Teniendo en cuenta que el radio de la cámara multipropósito es de 30 cm y que el largo de la cámara de ionización es de 12 cm, se decidió que la precámara tuviese una longitud de 15 cm, quedando 3 cm para colocar los conductos de ingreso y egreso del gas dentro de la cámara de ionización. En la figura 10.2 se presenta una foto del detector montado dentro de la cámara multipropósito.

El gas que ocupa el volumen de la precámara y el material de las ventanas que lo mantiene confinado se eligió de modo que no contenga hidrógeno, para evitar la siguiente reacción nuclear:



De otro modo, las partículas de  $^{10}\text{B}$  que ingresen al sistema de detección producirían iones de  $^4\text{He}$  y  $^7\text{Be}$  en un cierto rango de energías. Asimismo, el material utilizado debe estar compuesto por elementos cuyo número atómico sea suficientemente alto como para que la barrera coulombiana con  $B_{diez}$  se encuentre por encima de la energía disponible



**Figura 10.2:** Foto del detector utilizado ubicado dentro de la cámara multipropósito.

en el sistema, evitando así otro tipo de reacciones nucleares no elásticas. Si bien el <sup>7</sup>Be posee un número másico bastante diferente al del <sup>10</sup>Be que se quiere identificar, al tener una alta tasa de conteo genera una interferencia en los espectros que pueda llegar a dificultar la identificación de las partículas de interés. Por lo tanto fue indispensable asegurar el mínimo contenido de hidrógeno tanto en la ventana como en el gas utilizado en la precámara.

De acuerdo a las especificaciones de un sistema similar desarrollado en Canberra, Australia (Fifield et al., 1990, 2010), se utilizó gas Ar en el interior de la precámara y folias de *havar* para las ventanas. El *havar* es una aleación metálica no magnética de alta resistencia compuesta principalmente por Co (42 %), Cr(20 %), Ni(13 %) y Fe(19 %). Este material se consigue comercialmente en el exterior con espesores de 2  $\mu\text{m}$ , 4  $\mu\text{m}$  o mayores.

## 10.2 Simulación del detector

La detección e identificación del <sup>10</sup>Be se ve favorecida cuando mayor es su energía, por lo tanto, la presión óptima dentro de la precámara será la mínima necesaria para detener los iones de <sup>10</sup>B, de modo de maximizar la energía con que el <sup>10</sup>Be continúe luego de atravesarla. Si bien cuando mayor es la energía de las partículas, mayor resulta la diferencia entre la energía perdida por cada una de ellas al atravesar el gas, debe tenerse en cuenta también que existen rangos de tensión del terminal donde el acelerador opera sin ser exigido, reduciendo por ejemplo las probabilidades de una pérdida espontánea de la carga del terminal (chispa).



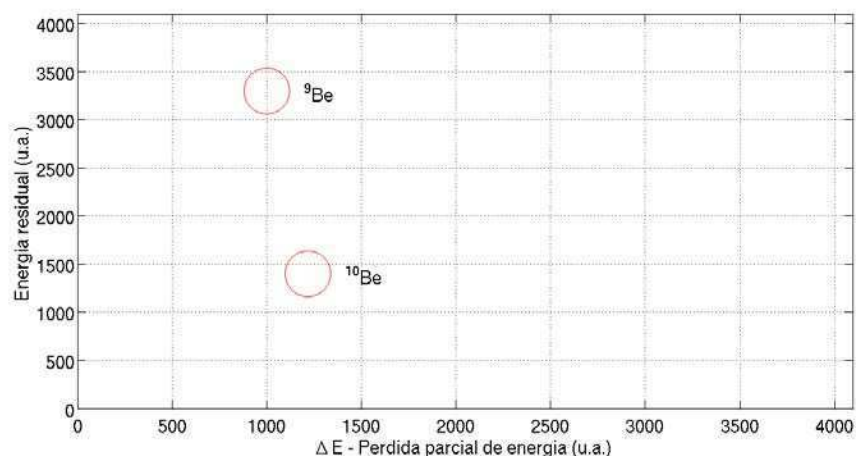
**Tabla 10.1:** Estado de carga, y energía inicial de las partículas que llegan a la precámara de gas y energía perdida en cada una de las etapas que deben atravesar para llegar al detector de energía residual, según cálculos basados en el código SRIM (Ziegler et al., 2010). Se indica además la tensión de terminal requerida en cada caso.

	Estado de carga	Energía inicial (MeV)	Tensión de terminal (MV)	Energía (MeV) perdida en			
				Havar (4 $\mu$ m)	gas Ar (175 Torr)	Havar (2 $\mu$ m)	gas P-10 (45 Torr)
$^9\text{Be}$	3	30,0	8,95	5,6	9,5	3,0	2,7
$^{10}\text{Be}$	3	27,0	8,00	5,8	10,8	3,3	3,2
$^{10}\text{B}$	3	27,0	8,00	9,0	18,0	0	0
$^9\text{Be}$	2	13,3 <sup>1</sup>	8,00	6,1	7,2	0	0

A partir del alcance de las diferentes partículas de interés en los distintos materiales que constituyen el sistema de detección, a saber: Havar, gas Ar, gas P-10 y Si, se escribió un código que permitiese estimar las pérdidas de energía en cada zona del detector para diferentes energías del haz y presiones tanto en la precámara como en la cámara de ionización. Los alcances de las diferentes partículas en cada material para sus posibles rangos de energía fueron calculados mediante el código SRIM (Ziegler et al., 2010). Este es un código de simulación basado en el método Monte Carlo que describe la interacción de iones acelerados con la materia. Para ello utiliza la aproximación de colisiones binarias con una selección aleatoria de parámetros de impacto. Permite calcular, entre otras cantidades, el frenado de iones acelerados en la materia y su rango de alcance.

En la tabla 10.1 se presenta un conjunto de parámetros que muestran un buen balance entre las necesidades del experimento y las posibilidades del acelerador. Se observa que en una precámara de 15 cm de longitud con gas Ar, una presión de 175 Torr es suficiente para detener completamente partículas de  $^{10}\text{B}$  con una energía de 27 MeV. En estas condiciones, el  $^{10}\text{Be}$  tiene aún suficiente energía ( $\sim 2,7$  MeV) para llegar al detector de barrera de superficie dispuesto al final de la cámara de ionización.

Estos cálculos permitieron además simular los espectros bidimensionales característicos a obtener durante las mediciones. En la figura 10.3 se presenta el espectro que se espera obtener en las condiciones experimentales indicadas en la tabla 10.1. La principal información que este espectro provee es la posición de la región donde se espera que aparezcan los eventos de  $^{10}\text{Be}$  relativa a la posición donde aparezcan los eventos producidos por iones espurios de  $^9\text{Be}$ .



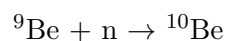
**Figura 10.3:** Espectro bidimensional simulado para las condiciones experimentales dadas en la tabla 10.1.

### 10.3 Producción de patrones

Para facilitar en primera instancia la detección del radionucleido  $^{10}\text{Be}$  y estudiar luego la sensibilidad del sistema, se irradió polvo de  $\text{BeO}$  con neutrones para producir  $^{10}\text{Be}$ . A partir de este material se realizaron diluciones isotópicas a fin de contar con patrones de diferente relación  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en el rango de  $10^{-15}$  a  $10^{-9}$ .

#### 10.3.1 Irradiación neutrónica

Para irradiar  $\text{BeO}$  en polvo se utilizó el flujo de neutrones térmicos del reactor RA-3 cito en el Centro Atómico Ezeiza de la Comisión Nacional de Energía Atómica. Para ello, fueron irradiados 372 mg del  $\text{BeO}$  cuya relación isotópica fue determinada previamente por la técnica de AMS en el Laboratorio de VERA, Viena en  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (9,2 \pm 0,8) \times 10^{-15}$  como se mencionó en la sección 5.4.2. El flujo de neutrones provisto por el reactor fue  $\Phi = (6,14 \pm 0,30) \times 10^{13}$  neutrones  $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$  y se irradió durante un tiempo  $t = (60 \pm 1)$  minutos. De este modo, mediante la reacción nuclear de captura



cuya sección eficaz para neutrones térmicos es  $\sigma = (8,77 \pm 0,35)$  mb (Mughabghab, 2003) se incrementó la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ .

La relación isotópica final alcanzada en el material irradiado puede calcularse a partir de la siguiente expresión:

$$^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = \sigma \times \Phi \times (1 - e^{-\lambda t})/\lambda$$

donde  $t$  es el tiempo de irradiación y  $\lambda$  es la constante de desintegración del  $^{10}\text{Be}$  ( $\lambda = \ln(2)/T_{1/2}$ ). El valor alcanzado fue  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (1,94 \pm 0,13) \times 10^{-9}$ .

### 10.3.2 Dilución isotópica

El polvo de BeO enriquecido en  $^{10}\text{Be}$  se llevó a solución mediante un ataque químico utilizando una mezcla ácida compuesta por HF + HCl + HNO<sub>3</sub> dentro de un vaso de teflón a 100°C. Luego una fracción se llevó a sequedad y se retomó con HCl formando una solución 1M de Be enriquecido (S<sub>5</sub>). El mismo ataque químico se realizó con BeO en polvo sin irradiar, produciendo así una segunda solución (S<sub>6</sub>) con Be de baja relación isotópica. La concentración de Be en ambas soluciones fue determinada por la técnica de ICP-OES, los resultados se presentan en la tabla 10.2. Una tercera solución (S<sub>7</sub>) fue preparada a partir de una dilución 1:100 de aquella con alta relación isotópica (S<sub>5</sub>). Las incertezas relativas porcentuales asociadas a estas mediciones fueron de un 5 %.

**Tabla 10.2:** Concentración de  $^9\text{Be}$  y  $^{10}\text{Be}$  en las diferentes soluciones de Be preparadas.

Solución	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$	Concentración de Be (ppm)	Átomos de $^9\text{Be}$ por ml	Átomos de $^{10}\text{Be}$ por ml
S <sub>5</sub>	$9,2 \times 10^{-15}$	245	$1,64 \times 10^{19}$	$1,51 \times 10^5$
S <sub>6</sub>	$2,0 \times 10^{-9}$	486	$3,25 \times 10^{19}$	$6,50 \times 10^{10}$
S <sub>7</sub>	$2,0 \times 10^{-9}$	4,86	$3,25 \times 10^{17}$	$6,50 \times 10^8$

Mezclando estas tres soluciones en proporciones adecuadas se prepararon otras seis soluciones de Be con diferente relación isotópica. Luego se procedió a precipitar el Be llevando cada una de ellas a pH  $\sim 9$  mediante el agregado de cantidad suficiente de NH<sub>3</sub>. En este medio básico el Be precipita en forma de hidróxido, Be(OH)<sub>2</sub>. Tras centrifugar y extraer el sobrenadante, se calcinó el precipitado en crisoles de cuarzo a 900 °C para lograr su oxidación. De este modo se obtuvieron seis patrones de más de 2 mg cada uno y con relación isotópica conocida. La relación isotópica en cada uno y el factor de dilución respecto de la solución S<sub>5</sub> se presentan en la tabla 10.3.

Finalmente este material enriquecido en  $^{10}\text{Be}$  se mezcló en relación 1:1 con Ag en polvo y se prensó en cátodos de la fuente de iones del acelerador TANDAR. Si bien la incerteza en la relación isotópica obtenida tras la irradiación en el reactor fue de un 6,5 %, debido a la incerteza en las concentraciones de Be (5 %) y las introducidas en la determinación de los diferentes volúmenes utilizados durante las diluciones (5 %), las relaciones isotópicas en los patrones obtenidos por dilución se conocen con una incerteza relativa porcentual total del 10 %.

Cabe destacar que todos los pasos fueron realizados extremando los cuidados en las condiciones de limpieza, usando material descartable para evitar contaminación cruzada, limpiando cuidadosamente el material no descartable y desechando todo aquello que fuese posible.

**Tabla 10.3:** Relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en los seis patrones preparados a partir de las soluciones  $S_5$ ,  $S_6$  y  $S_7$ .

Etiqueta	$S_5$ (ml)	$S_6$ (ml)	$S_7$ (ml)	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$	masa (mg)	factor
P <sub>1</sub>	0,0	5,00	0,00	$2,0 \times 10^{-9}$	2,4	1
P <sub>2</sub>	10,0	1,00	0,00	$3,3 \times 10^{-10}$	2,9	$1,66 \times 10^{-1}$
P <sub>3</sub>	10,0	0,27	0,00	$1,0 \times 10^{-10}$	2,6	$5,08 \times 10^{-2}$
P <sub>4</sub>	10,0	0,16	0,00	$6,2 \times 10^{-11}$	2,5	$3,08 \times 10^{-2}$
P <sub>5</sub>	10,0	0,00	0,10	$4,1 \times 10^{-13}$	2,5	$2,03 \times 10^{-4}$
P <sub>6</sub>	10,0	0,00	0,00	$9,2 \times 10^{-15}$	2,5	-

## 10.4 Método de medición empleado

En esta sección, se describe el método empleado para sintonizar haces de radionucleidos poco abundantes con el acelerador TANDAR.

### 10.4.1 Sintonización de un radionucleido

La sintonización de haces de partículas estables y abundantes, que producen corrientes del orden de las centenas de nanoAmpere en la fuente de iones (haces macroscópicos), se realiza habitualmente haciendo uso de los instrumentos de diagnóstico del haz con que cuenta el acelerador, BPMs y FCs. Valiéndose de estas lecturas, el operador del acelerador puede modificar los parámetros de los elementos ópticos a lo largo del acelerador, así como la tensión del terminal y los campos magnéticos tanto de los imanes inyector y analizador, para transportar un determinado haz desde la fuente de iones hasta el final de la línea donde se encuentra el sistema de detección.

Cuando se quiere sintonizar un radionucleido de interés en AMS con el objeto de medir su relación isotópica, el uso de BPMs y FCs no es posible, ya que la cantidad de partículas por unidad de tiempo que transporta el haz no es suficiente para que estos instrumentos produzcan señales apreciables. El método habitualmente empleado para hacerlo consiste en sintonizar primero un haz del isótopo estable y luego, sin modificar el campo magnético del imán analizador (i.e. rigidez magnética fija), modificar adecuadamente el campo del imán inyector y la tensión del terminal para sintonizar el radionucleido.

En particular, para sintonizar un haz de  $^{10}\text{Be}$ , se sintoniza en primer lugar un haz de  $^9\text{Be}$  utilizando los instrumentos de diagnóstico del haz. Para fijar por ejemplo su energía en 30 MeV para el estado de carga  $q = 3$  (la elección de estos valores fue justificada en la sección 10.1) la tensión del terminal debe ser de  $\sim 9$  MV (ver ecuación (2.5)). Para maximizar la corriente del haz al final de la línea, se deberán ajustar todos los elementos ópticos adecuadamente, en particular, habrá que fijar el campo magnético del imán analizador en el valor que corresponda a la rigidez magnética del  $^9\text{Be}$  que se quiere sintonizar (ver ecuación (2.4)).

Una vez sintonizado el  $^9\text{Be}$  y tras medir su corriente, se procede a sintonizar  $^{10}\text{Be}$  modificando el campo del imán inyector y tensión de terminal para que estos iones tengan la misma rigidez magnética que los iones de  $^9\text{Be}$  y sean sintonizados por el mismo el campo magnético del imán analizador. De este modo, los iones de  $^{10}\text{Be}$  resultarán correctamente transportados hasta el detector por los cuadrupolos y deflectores magnéticos de alta energía (ver figura 9.1) por poseer la misma rigidez magnética que el isótopo con que se ajustaron inicialmente. En particular, con el campo del imán analizador dispuesto para  $^9\text{Be}$  a 30 MeV y  $q = 3$  habrá que fijar la energía del  $^{10}\text{Be}$  a 27 MeV (ver ecuación 10.1), lo que se consigue llevando la tensión del terminal a  $\sim 8$  MV. Notar que de la ecuación (2.4) queda claro que la rigidez magnética  $B\rho$  de las partículas se mantiene constante:

$$(B\rho)^2 = \frac{2 \times 9 \text{ uma} \times 30 \text{ MeV}}{3^2} = \frac{2 \times 10 \text{ uma} \times 27 \text{ MeV}}{3^2} \quad (10.1)$$

Además, para sintonizar en la zona de baja energía moléculas de masa 26 (la correspondiente a la molécula de  $^{10}\text{BeO}$ ) habrá que incrementar el campo magnético del imán inyector en un factor  $\sqrt{\frac{26}{25}}$  de acuerdo a la ecuación (2.4).

#### 10.4.2 Ajuste de la óptica interna

Debido a su tamaño, el acelerador TANDAR dispone de tres elementos ópticos en el interior del tanque de aceleración (ver figura 9.1), todos ellos eléctricos. El efecto que la aplicación de un campo eléctrico surte sobre la trayectoria de una carga en movimiento es proporcional a su energía, por lo tanto, dado que luego de sintonizar  $^9\text{Be}$  la tensión del terminal debe modificarse para sintonizar  $^{10}\text{Be}$ , estos elementos ópticos también deben ser modificados adecuadamente para una correcta sintonización del  $^{10}\text{Be}$ .

El primero de los elementos ópticos dentro del tanque de aceleración es un cuadrupolo eléctrico (EQ-D1, ver figura 9.1), ubicado en la primer zona muerta de la zona de baja energía. Esta zona muerta está ubicada luego de 7 unidades de aceleración, de un total de 20 que posee el sector de baja energía. Cuando las partículas pasan por este cuadrupolo tienen estado de carga  $q = -1$  y poseen una energía proporcional a la diferencia de potencial a la que fueron sometidas, esto es  $7/20$  de la tensión de terminal  $V_T$ . La energía

con que las partículas pasan a través del campo eléctrico producido por este cuadrupolo es entonces:

$$E_{EQ-D1} = e(V_{pre} + \frac{7}{20}V_T) \quad (10.2)$$

donde  $V_{pre}$  es la diferencia de potencial a la que fueron sometidas durante la preaceleración luego del imán inyector y antes de ingresar al tanque de aceleración.

El segundo elemento óptico es un dipolo eléctrico (ES-T1, ver figura 9.1) que se encuentra justo antes del intercambiador de cargas. En este punto la diferencia de potencial con la entrada del tanque de aceleración es igual a la tensión de terminal y como aún la molécula no se rompió ni cambió su estado de carga, la energía puede calcularse como:

$$E_{ES-T1} = e(V_{pre} + V_T) \quad (10.3)$$

El tercer elemento óptico es otro cuadrupolo eléctrico (EQ-T, ver figura 9.1) que se encuentra justo después del *stripper*. Por lo tanto, en este punto los iones de Be ya no forman parte del ión molecular con que fueron extraídos de la fuente de iones. La energía que tendrán luego de que la molécula acelerada hasta el terminal se rompa será proporcional al cociente entre su masa ( $m_{átomo}$ ) y la del ión molecular del que formaban parte ( $m_{molécula}$ ):

$$E_{EQ-T} = e(V_{pre} + V_T) \frac{m_{átomo}}{m_{molécula}}. \quad (10.4)$$

A partir de estas expresiones es posible conocer cuál es la energía con que el  $^9\text{Be}$  fue sintonizado por cada uno de estos elementos ópticos. Calculando la energía con que el radioisótopo  $^{10}\text{Be}$  pasará por cada uno de ellos es posible conocer el cociente entre estas últimas y las primeras. Dichos cocientes constituyen los factores por los cuales deben modificarse los campos eléctricos de estos elementos para sintonizar  $^{10}\text{Be}$ .

## 10.5 Resultados experimentales

Las mediciones se realizaron con tres objetivos, a saber: estudiar y eliminar el fondo producido por interferencias, determinar la relación isotópica en patrones y, determinar la sensibilidad alcanzada. Las mediciones y resultados obtenidos al abordar cada uno de estos objetivos se presentan en las siguientes subsecciones.

### 10.5.1 Eliminación de interferencias

Como ya se ha señalado en las secciones 3.4 y 10.1, las energías que el acelerador TANDAR es capaz de imprimirle a las partículas es suficiente para lograr la completa supresión

del  $^{10}\text{B}$  sin comprometer la detección del  $^{10}\text{Be}$ . Sin embargo, existe otra interferencia que sí ha significado un importante desafío durante las mediciones: la producida por una fracción dispersada de iones espurios de  $^9\text{Be}$  cuyo origen se describió en la sección 9.4.

Los iones espurios de  $^9\text{Be}$  no constituyen una interferencia en sí misma, ya que tanto la energía que pierden en el gas de la cámara de ionización, como la energía residual con que llegan al detector de barrera de superficie dentro de la cámara de ionización, son fácilmente distinguibles de aquellas correspondientes al  $^{10}\text{Be}$ .<sup>2</sup> Sin embargo, estos iones espurios pueden representar un problema cuando pierden energía por dispersarse en algún lugar de la línea de transporte del haz posterior al imán analizador, o bien, en las paredes de la precámara de gas dispuesta delante de la cámara de ionización.

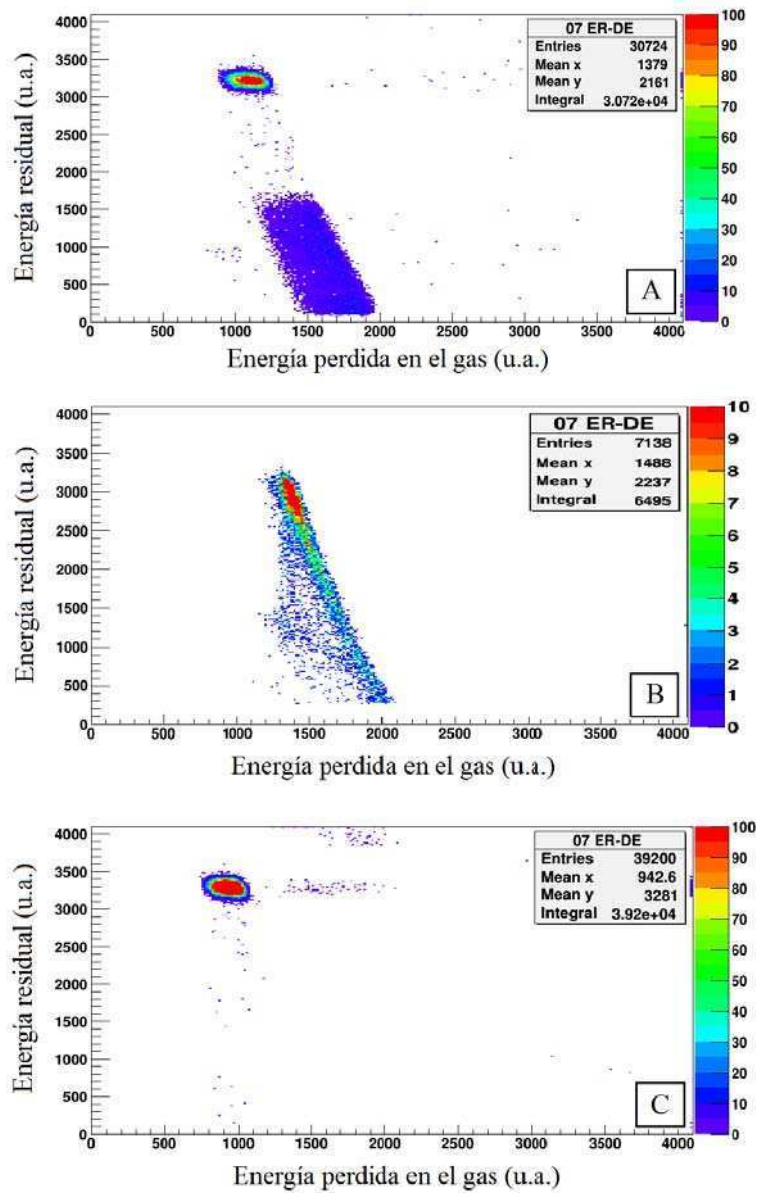
Para estudiar y eliminar la contribución que esta interferencia puede hacer a la región del espectro bidimensional destinada a contabilizar los eventos de  $^{10}\text{Be}$  (ver figura 10.3), luego de sintonizar partículas del radioisótopo  $^{10}\text{Be}$  a través de todo el acelerador siguiendo el procedimiento descrito en la sección 10.4.1, se favoreció el ingreso de su isótopo estable  $^9\text{Be}$  ajustando el campo del imán inyector para masa 25 (correspondiente a los aniones  $^9\text{BeO}^-$ ). Al hacerlo, se verificó que el número de iones espurios de  $^9\text{Be}$  se incrementaba significativamente, y con ello también, el número de iones espurios dispersados. Uno de los espectros obtenidos en estas condiciones se presenta en el panel A de la figura 10.4.

Para confirmar que todos los eventos observados corresponden a partículas de  $^9\text{Be}$ , se aumentó lentamente (a razón de 0,5 mBar por segundo aproximadamente) la presión de Ar dentro de la precámara. De este modo la energía con que las partículas ingresaban en la cámara de ionización fue cada vez menor. El resultado de esta prueba se presenta en el panel B de la figura 10.4, donde se observa un patrón similar al obtenido anteriormente, pero con menos estadística por tratarse de una medición de menor duración.

El hecho de que partículas de un dado elemento con diferente energía presentan en un espectro bidimensional (donde se grafica la energía residual vs. la pérdida parcial de energía) una distribución con forma de hipérbola se explica a partir de la fórmula de Bethe-Bloch (expresión 3.2). En ella puede apreciarse que la pérdida de energía al interactuar con la materia (en este caso, el gas de la cámara de ionización) es proporcional a la inversa de la energía de la partícula.

Para eliminar el fondo producido por estos iones espurios de  $^9\text{Be}$  dispersados se procedió en primer lugar a estudiar que efecto surte reducir la apertura de los colimadores *slits* posteriores al imán analizador (ver figura 9.1). Se observó que la tasa de conteo de iones espurios de  $^9\text{Be}$  dispersados se reducía a lo sumo un orden de magnitud respecto a la tasa de aparición de los que no se dispersaban.

<sup>2</sup>Ver en la tabla 10.1 los valores correspondientes a  $^9\text{Be}$  a 30 MeV ya que esta será la energía de los iones espurios que doblen correctamente en el imán analizador.



**Figura 10.4:** Espectros bidimensionales correspondientes a un cátodo con material portador ( $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 9,2 \times 10^{-15}$ ) al sintonizar  $^{10}\text{Be}$  pero favoreciendo la entrada de  $^9\text{Be}$  con el imán inyector. Panel A: sin restringir la apertura de los colimadores. Panel B: aumentando la presión de Ar en la precámara de gas. Panel C: restringiendo la apertura de los colimadores y optimizando el campo del dipolo eléctrico posterior al terminal de alta tensión.

Cabe mencionar que colimar el haz a la salida de un imán analizador es equivalente a aumentar su resolución, ya que al exigir mayor precisión en el radio de giro de las partículas se disminuye la dispersión en energía y en masa de las partículas aceptadas.



Por lo tanto, las dispersiones observadas debían ocurrir necesariamente luego del imán analizador, de otro modo este no hubiese doblado correctamente a las partículas cuya energía se hubiera modificado.

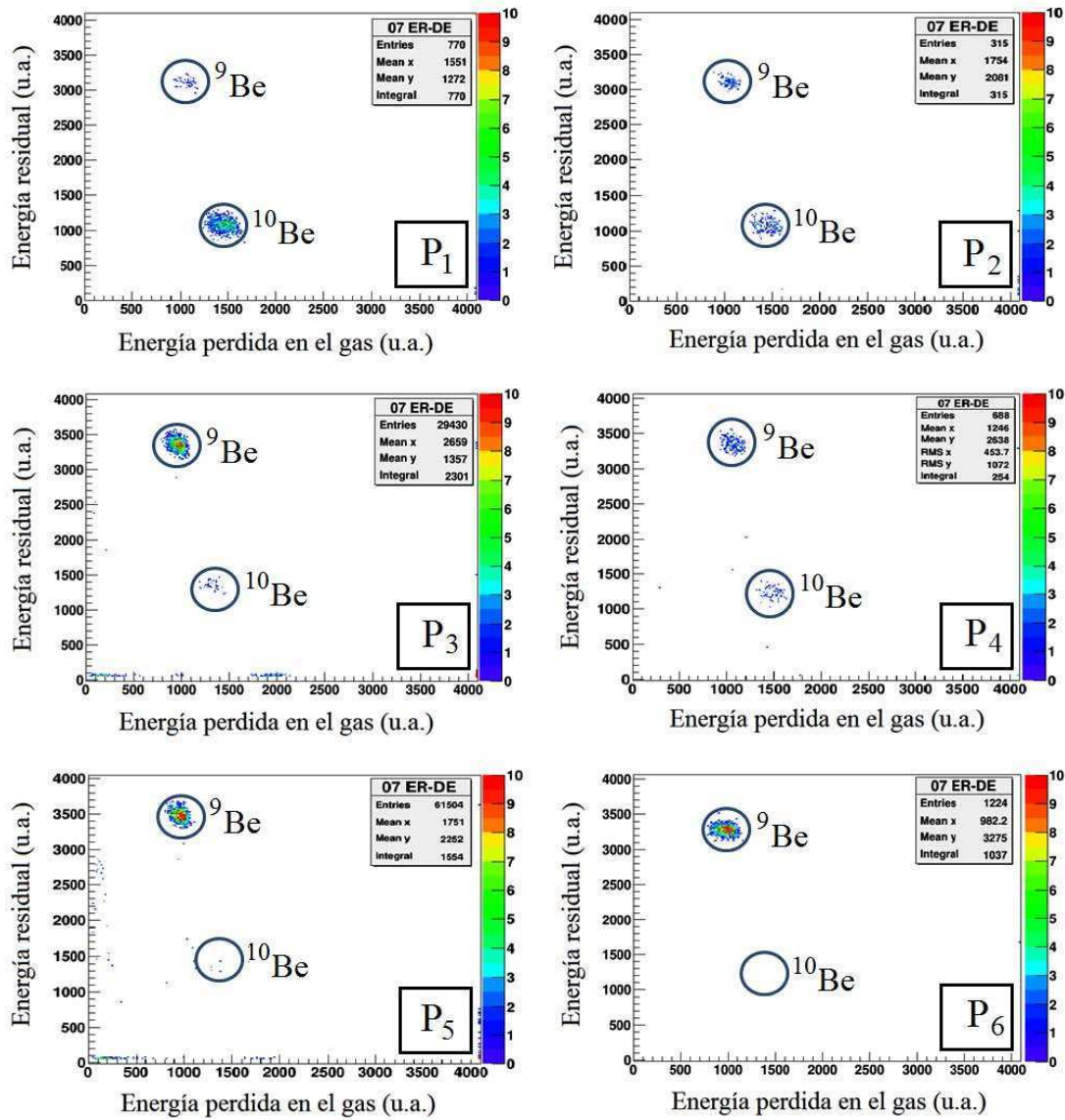
En segundo lugar, se modificaron los parámetros correspondientes a los elementos ópticos que se encuentran dentro del tanque de aceleración alrededor de los valores asignados de acuerdo a lo explicado en la sección 10.4.2. Al hacerlo, se observó que la aparición de iones espurios dispersados era fuertemente dependiente del valor asignado al deflector electrostático que se encuentra justo después del terminal de alta tensión (ver figura 9.1). Optimizando el campo eléctrico generado por este elemento se logró reducir la tasa de aparición de iones de  ${}^9\text{Be}$  dispersados en un factor  $\sim 10^3$  respecto de aquellos que llegaban al detector sin hacerlo. La diferencia entre el valor óptimo y el calculado para este elemento óptico (ver sección 10.4.2) podría deberse a una desalineación de la línea de transporte del haz.

Sin embargo, para alcanzar sensibilidades por debajo de  $\sim 10^{-11}$ , sin embargo, se requiere que la zona del espectro donde se esperan las partículas de  ${}^{10}\text{Be}$  se encuentre esencialmente libre de interferencias. Esto se logró finalmente reduciendo la apertura de dos juegos de cuatro placas que permiten colimar el haz justo antes de su ingreso a la cámara de reacciones donde se encontraba el sistema de detección. De este modo, fue posible reducir a cero la aparición de iones espurios de  ${}^9\text{Be}$  dispersado en mediciones donde se contabilizaron más de 30.000 iones espurios de  ${}^9\text{Be}$ . Uno de los espectros resultantes luego de estas modificaciones se presenta en el panel C de la figura 10.4.

Cabe recordar en este punto que durante las pruebas mencionadas el ingreso de  ${}^9\text{Be}$  se favoreció intencionalmente ajustando el imán inyector para girar partículas de masa 25, de modo de evaluar más rápidamente la relación entre  ${}^9\text{Be}$  dispersado y sin dispersar. Durante las mediciones de  ${}^{10}\text{Be}$ , el imán inyector se dispondrá para girar partículas de masa 26 (correspondiente a aniones de  ${}^{10}\text{BeO}^-$ ) reduciéndose drásticamente la probabilidad de que iones de  ${}^9\text{Be}$ , formando parte de una molécula de masa 25, consigan ingresar en el acelerador. En este caso se puede asumir que la probabilidad de los iones espurios dispersados que pueden interferir con la detección de  ${}^{10}\text{Be}$  disminuirá en la misma proporción.

### 10.5.2 Medición de patrones

En la figura 10.5 se presentan seis espectros bidimensionales obtenidos al medir cátodos con material de los patrones de diferente relación isotópica ( $P_1$ ,  $P_2$ ,  $P_3$ ,  $P_4$ ,  $P_5$  y  $P_6$ ).



**Figura 10.5:** Espectros bidimensionales característicos de energía residual vs. energía perdida en el gas de la cámara de ionización obtenidos durante las mediciones de los patrones de diferente relación isotópica (ver tabla 10.3).

Como puede observarse, la discriminación e identificación del <sup>10</sup>Be es excelente en mediciones realizadas con material de hasta <sup>10</sup>Be/<sup>9</sup>Be =  $6,2 \times 10^{-11}$  (P<sub>1</sub>, P<sub>2</sub>, P<sub>3</sub> y P<sub>4</sub>), y no hay evidencia alguna de partículas de <sup>10</sup>B en ninguno de los espectros ya que la presión en la precámara con Ar fue ajustada para que este se detenga antes de ingresar a la cámara de ionización.

Los únicos eventos diferentes de los de interés que se observan en todos los espectros son los producidos por los iones espurios de  $^9\text{Be}$ , sin embargo, tanto su pérdida parcial de energía en el gas de la cámara de ionización como su energía residual son significativamente distintas a las del  $^{10}\text{Be}$  y no representan un problema. Por el contrario, su ubicación en el espectro es útil a modo de calibración, ya que a partir del espectro simulado (figura 10.3) es posible predecir la ubicación de las partículas de  $^{10}\text{Be}$  relativas a la posición de los iones de  $^9\text{Be}$ . Por otra parte, la posición del  $^9\text{Be}$  es un monitor de presión del gas tanto en la precámara con Ar, como en la cámara de ionización con P-10, ya que si alguna de estas presiones cambiara en 1 mBar, la región donde aparece el  $^9\text{Be}$  se movería aproximadamente 15 canales. Esto explica por ejemplo, que en la figura 10.4 los iones de  $^9\text{Be}$  no aparecen en el mismo lugar en los espectros de los paneles A y C. Otra ventaja de la presencia de estos iones espurios de  $^9\text{Be}$  (sin dispersar) en los espectros es que pueden ser utilizados como monitor de la estabilidad del acelerador ya que un brusco cambio en su tasa de conteo daría cuenta de que la sintonización del radionucleido se vio afectada por alguna inestabilidad de la máquina.

La única diferencia apreciable entre los espectros de la figura 10.5 es la relación entre el conteo de  $^{10}\text{Be}$  y el de  $^9\text{Be}$  espurio. Esto se debe a que la tasa de iones espurios de  $^9\text{Be}$  que consiguen llegar hasta el detector es proporcional a la corriente del haz, aproximadamente constante durante estas mediciones. Sin embargo, el conteo de  $^{10}\text{Be}$  depende además de la relación isotópica del cátodo. Debe tenerse en cuenta además que la relación en los espectros entre el conteo de  $^9\text{Be}$  espurio y  $^{10}\text{Be}$ , también se ve fuertemente afectada por la transmisión conseguida durante la sintonización. De hecho, puede observarse que el espectro correspondiente al patrón P<sub>4</sub> de la figura 10.3 correspondiente a  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 6,2 \times 10^{-11}$  evidencia una relación  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}_{\text{espurio}}$  más alta que el espectro P<sub>3</sub> donde  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 1,0 \times 10^{-10}$ .

Debido a las bajas corrientes con que se realizaron estos experimentos, del orden de  $\sim 10$  nA, medir relaciones isotópicas menores a  $\sim 10^{-11}$  requirió largos tiempos de adquisición ( $\sim 1$  hora), corriendo el riesgo de que se altere la sintonización del radionucleido debido a inestabilidades en los elementos ópticos del acelerador. A modo de ejemplo puede decirse que durante una medición de una hora de duración de un cátodo con material de relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 4,1 \times 10^{-13}$  se registraron cuatro eventos en la región del  $^{10}\text{Be}$  (espectro obtenido con el patrón P<sub>5</sub> de la figura 10.5).

Por último, es importante destacar que la proyección sobre cualquiera de los ejes del espectro bidimensional es suficiente para discriminar el  $^{10}\text{Be}$  de los iones espurios de su isótopo  $^9\text{Be}$ . Esto significa que bastaría un único detector para lograr su identificación.

**Tabla 10.4:** Cocientes entre las relaciones isotópicas medidas (R medido) y su comparación con las correspondientes relaciones isotópicas esperadas (R esperado).

Cociente	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$		R esperado		R medido	
	A	B	A/B	Error	A/B	Error
R <sub>1</sub>	$2,0 \times 10^{-9}$	$3,3 \times 10^{-10}$	6,1	0,9	4,8	0,6
R <sub>2</sub>	$2,0 \times 10^{-9}$	$1,0 \times 10^{-10}$	20,0	2,8	19	5
R <sub>3</sub>	$2,0 \times 10^{-9}$	$6,2 \times 10^{-11}$	32,3	4,6	27	6
R <sub>4</sub>	$3,3 \times 10^{-10}$	$1,0 \times 10^{-10}$	3,3	0,5	3,8	0,7
R <sub>5</sub>	$1,0 \times 10^{-10}$	$6,2 \times 10^{-11}$	1,6	0,2	1,2	0,5
R <sub>6</sub>	$3,3 \times 10^{-10}$	$4,1 \times 10^{-13}$	799	113	1.114	517

## 10.6 Análisis de los resultados

A partir de las mediciones realizadas es posible estudiar la correspondencia entre las relaciones isotópicas medidas y sus correspondientes relaciones isotópicas esperadas y determina la sensibilidad alcanzada durante la implementación de la técnica.

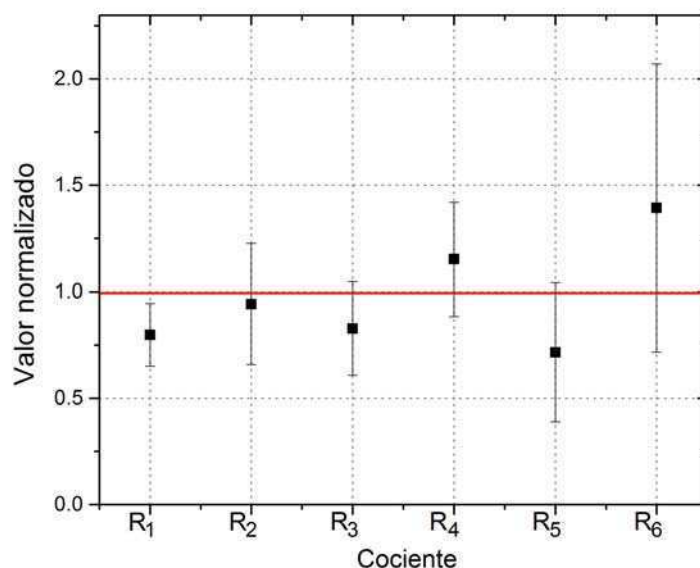
### 10.6.1 Valores medidos vs. esperados

Utilizando la expresión (2.6) se calculó la relación isotópica medida  $R^{med}$  para cada una de las mediciones realizadas con cada uno de los patrones. Para conocer sus respectivas relaciones isotópicas reales  $R^{real}$  es necesario conocer la transmisión  $T$  durante cada medición (ver ecuación (2.7)). Cuando se miden muestras cuya relación isotópica se desea conocer, esto habitualmente se consigue alternando la medición de un estándar (patrón de alta relación isotópica) entre ellas.

En este trabajo, para independizar el análisis de los resultados obtenidos del valor de la transmisión, se calculó el cociente entre pares de relaciones isotópicas medidas. Que dichos cocientes sean independientes de la transmisión del sistema es una hipótesis válida en tanto pueda considerarse que la transmisión fue la misma en ambas mediciones.

Para asegurar esta condición, se calcularon los cocientes de mediciones consecutivas en las que los únicos cambios en la óptica del acelerador fueron los estrictamente necesarios para pasar del  $^9\text{Be}$  a  $^{10}\text{Be}$ . En la tabla 10.4 se informan los resultados obtenidos al practicar el cociente entre las relaciones isotópicas medidas y las esperadas de acuerdo a su valor nominal (Rodrigues et al., 2015).

Para mostrar la correspondencia entre los valores obtenidos para los cocientes de las relaciones isotópicas (R medido) y sus respectivos valores esperados (R esperado), se



**Figura 10.6:** Resultados normalizados de los cocientes entre las relaciones isotópicas medidas.

normalizó a los primeros con los segundos. En la figura 10.6 se los presenta conjuntamente. Se observa una excelente correspondencia entre dichos valores normalizados y la unidad. De hecho, el valor de  $\chi^2$  correspondiente es 3,95, lo que equivale a un valor p de 0,5566.

### 10.6.2 Determinación de la sensibilidad

Para determinar la sensibilidad alcanzada en esta implementación de la técnica se utilizaron cátodos con material del patrón P6, es decir, material portador sin enriquecer en  $^{10}\text{Be}$ . Se realizaron dos mediciones de una hora de duración cada una y no se registraron eventos en la región definida para  $^{10}\text{Be}$  (figura 10.5). Esta región se definió realizando una medición del material patrón P3 inmediatamente antes y después de esta medición del patrón P6.

De acuerdo a los criterios estadísticos desarrollados por Feldman y Cousins (1998), en una medición donde no se registran eventos y el fondo esperado es nulo, el intervalo  $[0; 1,29]$  corresponde al 68,27 % de nivel de confianza. Considerando el tiempo de medición y la corriente de  $^9\text{Be}$  puede calcularse una cota superior para la relación isotópica correspondiente a esta medida a partir de la ecuación (2.6). El valor resultante es:

$$^{10}\text{Be}/^9\text{Be} < 5 \times 10^{-13}.$$

Este valor podría reducirse aumentando el tiempo de medición, pero eso exige que

la máquina sea estable durante largos períodos de tiempo. El parámetro que más fuertemente condiciona las posibilidades de reducir esta sensibilidad es la corriente al final de la línea experimental, que como se mencionó anteriormente fue del orden de 10 nA durante las mediciones. Con corrientes un orden de magnitud mayores (habituales en instalaciones más modernas), la sensibilidad alcanzada mejoraría en la misma proporción. Esto permitiría obtener sensibilidades dentro de los rangos actuales de la técnica a nivel internacional ( $10^{-15}$  -  $10^{-14}$ ). Es importante mencionar que mejorar la corriente del haz que llega al sistema de detección no sólo depende de una mejor producción en la fuente de iones sino además de lograr valores más altos de transmisión de las partículas a través de todo el acelerador.



Parte V

Conclusiones y apéndices





# 11

## Conclusiones

En este trabajo de tesis doctoral se realizaron diversos estudios originales en el campo de la geología y la astrofísica utilizando  $^{10}\text{Be}$  y  $^{53}\text{Mn}$  como radiotrazadores. Estos estudios comprendieron la selección de las muestras, el desarrollo de métodos químicos específicos para su procesado y la medición de las relaciones isotópicas  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  y  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  mediante la técnica de espectrometría de masas con aceleradores. Asimismo, para interpretar estos resultados se desarrollaron modelos sobre la producción y transporte de estos radiotrazadores.

**Aplicaciones geológicas** En el estudio de la subducción de la placa de Nazca se caracterizaron sedimentos submarinos acretados sobre la placa Continental y se analizó el proceso de reciclado en el que una fracción del material subducido es devuelto a la superficie a través de erupciones volcánicas. Para caracterizar los sedimentos acretados se midió la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  en 14 muestras de hasta 250 metros de profundidad. A partir de esta información fue posible estudiar diferentes aspectos de su dinámica:

- Se identificaron los efectos de corrientes turbidíticas sobre la concentración de  $^{10}\text{Be}$  dando cuenta de la ocurrencia de este fenómeno en determinadas capas de sedimento submarino.
- Se verificó la existencia de una falla inversa a  $\sim 230$  metros de profundidad a través de la inversión del perfil en profundidad del radionucleido  $^{10}\text{Be}$  producto de una inversión en la edad de las capas de sedimentos estudiadas.
- Se determinó la tasa de sedimentación en los sedimentos estudiados, resultando 88 m/m.a. para los primeros 130 metros y 31 m/m.a. para los siguientes 100 metros. Este resultado es compatible con el cambio en la presencia de turbiditas también registradas en estudios litoestratigráficos de las muestras (Behrmann et al., 1992).

- 
- Se estableció el inventario de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos submarinos acumulados sobre la placa de Nazca, resultando su concentración en los más superficiales igual a  $^{10}\text{Be} = (0,95 \pm 0,16) \times 10^9$  átomos/g.
  - Se dataron cuatro muestras verificando que los sedimentos más profundos corresponden a  $(5,0 \pm 0,5)$  Ma.
  - Se evaluó la posibilidad de utilizar el  $^{53}\text{Mn}$  como trazador del reciclado de sedimentos y se concluyó que, por resultar  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn} < 1,7 \times 10^{-12}$  en cuatro muestras de sedimento, luego de sufrir la dilución isotópica con material de la astenósfera, la relación isotópica en magmas eruptados se espera por debajo del límite de detección de la técnica de AMS.

Para analizar aspectos del proceso de reciclado, se midió la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en magmas y/o cenizas eruptadas por los volcanes Hudson, Chaiten, Puyehue y Quizapu, y se relacionó esta información con el inventario de  $^{10}\text{Be}$  en sedimentos submarinos. Para ello:

- Se verificó que la concentración de  $^{10}\text{Be}$  en una muestra de intraplaca considerada como blanco geológico se encontraba por debajo del límite de detección de la técnica, dando cuenta de que el  $^{10}\text{Be}$  presente en cenizas y rocas volcánicas es el resultado del aporte realizado por sedimentos ricos en  $^{10}\text{Be}$  durante la subducción.
- Se desarrolló y evaluó un modelo para cuantificar la participación de los sedimentos submarinos en la conformación de los magmas eruptados.
- Se estimó en  $\sim 15$  % el porcentaje de material sedimentario que participa en la conformación de magmas eruptados por el volcán Hudson en acuerdo con los valores reportados en otros arcos volcánicos (Tera et al., 1986, Dreyer et al., 2010).
- Se encontró que se requiere que todo el sedimento aportado por la placa oceánica haya subducido en la latitud del volcán Chaiten para explicar la concentración de  $^{10}\text{Be}$  observada en sus tefras sin requerir elevados porcentajes de participación de los sedimentos en sus magmas. En el volcán Puyehue en cambio, si la acreción de los sedimentos fue nula, entonces el porcentaje de participación en sus magmas fue inferior al 5 %.
- Se encontró que la dinámica del reciclado a la latitud del volcán Quizapu no puede ser descrita con el modelo aquí propuesto. Dada la avanzada edad de la placa que subduce a esa latitud el sedimento no tuvo una tasa de depositación constante y por lo tanto la cantidad acumulada no es proporcional a la edad de la placa.

**Aplicaciones astrofísicas** Utilizando el  $^{53}\text{Mn}$  como radiotrazador se estudió el flujo de material interplanetario que ingresa a la Tierra. Para esto:

- Se procesó químicamente una muestra de 1.400 kg de nieve antártica para extraer los 4,5 mg de Mn y 22  $\mu\text{g}$  de Be que contenía. Esto significó el diseño, construcción e implementación de un sistema para concentrar la muestra utilizando columnas de intercambio catiónico.
- Se estableció una cota superior para el flujo de  $^{53}\text{Mn}$  que ingresa a nuestro planeta en  $4,8 \times 10^3$  átomos  $\text{cm}^{-2} \text{a}^{-1}$  utilizando el  $^{53}\text{Mn}$  como trazador de la depositación de polvo interplanetario y el  $^{10}\text{Be}$  como trazador de su transporte y depositación atmosférica. Este resultado excluye uno de los dos valores existentes en la literatura (Bibron et al., 1974).
- Se estableció una cota inferior de 50 pc para la distancia efectiva a la cual debieron ocurrir explosiones de supernovas cercanas capaces de depositar en nuestro planeta los átomos de  $^{60}\text{Fe}$  encontrados en muestras de corteza oceánica de ferromanganeso (Knie et al., 2004).
- Se modeló y calculó la concentración de  $^{53}\text{Mn}$  en el polvo interplanetario y a partir de esta información, junto a la cota impuesta para el flujo de  $^{53}\text{Mn}$ , se estableció un límite superior de 360 toneladas a la cantidad de polvo interplanetario que ingresa a nuestro planeta por día. Este resultado es compatible con los existentes (Plane, 2012) si bien el enfoque utilizado no fue reportado en la literatura.

**AMS con el acelerador TANDAR** Si bien la técnica de AMS posee múltiples aplicaciones en diversas disciplinas científicas, en nuestro país, los esfuerzos dedicados a lograr su implementación no habían permitido hasta el momento cuantificar relaciones isotópicas. Como parte de este trabajo doctoral, si bien las mediciones requeridas en las investigaciones conducidas se realizaron en cuatro aceleradores del exterior, paralelamente se trabajó en la implementación de la técnica de AMS con el acelerador TANDAR para la determinación de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ . Para esto:

- Se diseñó y construyó un absorbente pasivo capaz de suprimir completamente la interferencia isobárica producida por el  $^{10}\text{B}$ .
- Se consiguió eliminar completamente la interferencia isotópica introducida por iones de  $^9\text{Be}$  dispersados luego del imán analizador, permitiendo la clara identificación del radionucleido de interés.

- 
- Se produjeron patrones de  $^{10}\text{Be}$  de diferentes relaciones isotópicas a partir de la irradiación neutrónica de BeO natural y la posterior dilución isotópica con material sin irradiar.
  - Se determinó la sensibilidad alcanzada en  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 5 \times 10^{-13}$ . Si bien este límite de detección aún se encuentra un orden de magnitud por encima de los actualmente alcanzados en otros laboratorios, es suficiente para realizar estudios como los descritos en esta tesis donde se requiere medir muestras con relaciones isotópicas  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} \sim 10^{-11}$ .

En suma, en esta tesis doctoral se hicieron contribuciones científicas originales en geología y en astrofísica y se implementó la técnica de AMS en el Laboratorio TANDAR. Esto último abre la posibilidad de contar en nuestro país con una herramienta única capaz de potenciar un sinnúmero de disciplinas científicas y desarrollos tecnológicos.

# A

## Cálculo de relaciones isotópicas

Con las relaciones isotópicas *medidas* en los cátodos con muestra y con portador (blanco), y conociendo las concentraciones del radioisótopo de interés en la muestra y en el material portador agregado al prepararla, junto con la masa procesada de cada uno de ellos, se cuenta con toda la información necesaria para calcular la relación isotópica *medida* en la muestra. Para hacerlo, debe tenerse en cuenta que los átomos del radioisótopo de interés presentes en cada uno de los cátodos no son sólo los del material con que fue preparado, sino también posibles átomos aportados por contaminación durante el proceso químico.

En adelante, la descripción se hará tomando al  $^{10}\text{Be}$  como ejemplo, pero de la misma forma puede trabajarse con cualquier otro radionucleido.

Los átomos de  $^{10}\text{Be}$  presentes en el cátodo que contiene la muestra son la suma de los aportados por la muestra propiamente dicha  $^{10}\text{Be}_m$ , el material portador agregado  $^{10}\text{Be}_p$  y posibles contaminaciones durante la preparación química  $^{10}\text{Be}_q$ . Mientras que los átomos de  $^9\text{Be}$  presentes son suma del  $^9\text{Be}_m$  original en la muestra y el agregado por el portador  $^9\text{Be}_p$ , despreciando completamente el aporte de  $^9\text{Be}_q$  por contaminación química frente a los dos anteriores. Durante la medición además, existe la posibilidad de contabilizar como átomos de  $^{10}\text{Be}$  eventos que no lo son debido a alguna interferencia que entró en la *ROI* de los espectros preestablecida para el  $^{10}\text{Be}$ , o bien eventos de  $^{10}\text{Be}$  provenientes de contaminación cruzada en la fuente de iones. Estos posibles aportes se considerarán como un fondo y se denotará como  $^{10}\text{Be}_f$ . Se tiene por lo tanto que:

$$\frac{^{10}\text{Be}_c^{\text{med}}}{^9\text{Be}_c^{\text{med}}} = T \frac{^{10}\text{Be}_m + ^{10}\text{Be}_p + ^{10}\text{Be}_q + ^{10}\text{Be}_f}{^9\text{Be}_m + ^9\text{Be}_p} \quad (\text{A.1})$$

donde se ha incluido  $T$  de acuerdo a la ecuación (2.7). El denominador de la expresión (A.1) puede calcularse a partir de las concentraciones de berilio medidas por ICP-OES o bien ICP-MS tanto en la muestra  $C_{\text{muestra}}$  como en la solución de portador  $C_{\text{portador}}$  utilizada para su preparación y, la masa presente de cada uno de ellos ( $m_{\text{muestra}}$ ,  $m_{\text{portador}}$ ).

$${}^9\text{Be}_m = C_{\text{muestra}} \cdot m_{\text{muestra}} \quad (\text{A.2})$$

$${}^9\text{Be}_p = C_{\text{portador}} \cdot m_{\text{portador}}$$

Además se mide un cátodo denominado blanco que sólo contiene material portador procesado químicamente, en este caso el aporte de  ${}^{10}\text{Be}$  y  ${}^9\text{Be}$  al cátodo está dado por:

$$\frac{{}^{10}\text{Be}_p^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_p^{\text{med}}} = T \frac{{}^{10}\text{Be}_p + {}^{10}\text{Be}_q + {}^{10}\text{Be}_f}{{}^9\text{Be}_p} \quad (\text{A.3})$$

De la diferencia entre (A.1) y (A.3) se obtiene:

$$\frac{1}{T} \left( \frac{{}^{10}\text{Be}_c^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_c^{\text{med}}} - \frac{{}^{10}\text{Be}_p^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_p^{\text{med}}} \right) = \alpha \frac{{}^{10}\text{Be}_m}{{}^9\text{Be}_p} + (\alpha - 1) \frac{{}^{10}\text{Be}_p + {}^{10}\text{Be}_q + {}^{10}\text{Be}_f}{{}^9\text{Be}_p} \quad (\text{A.4})$$

con

$$\alpha = \frac{{}^9\text{Be}_p}{{}^9\text{Be}_m + {}^9\text{Be}_p} \quad (\text{A.5})$$

Teniendo en cuenta que cuando se agrega portador, este supera en masa por al menos dos órdenes de magnitud al  ${}^9\text{Be}$  aportado por la muestra, el valor de  $\alpha$  puede considerarse igual a 1 cometiendo un error menor al 1% y la ecuación (A.4) puede simplificarse en:

$$\frac{1}{T} \left( \frac{{}^{10}\text{Be}_c^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_c^{\text{med}}} - \frac{{}^{10}\text{Be}_p^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_p^{\text{med}}} \right) = \frac{{}^{10}\text{Be}_m}{{}^9\text{Be}_p} \quad (\text{A.6})$$

despejando la relación isotópica en la muestra resulta:

$$\frac{{}^{10}\text{Be}_m}{{}^9\text{Be}_m} = \frac{1}{T} \frac{{}^9\text{Be}_p}{{}^9\text{Be}_m} \left( \frac{{}^{10}\text{Be}_c^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_c^{\text{med}}} - \frac{{}^{10}\text{Be}_p^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_p^{\text{med}}} \right) \quad (\text{A.7})$$

donde

$$\frac{{}^9\text{Be}_p}{{}^9\text{Be}_m} = \frac{C_{\text{portador}} \cdot m_{\text{portador}}}{C_{\text{muestra}} \cdot m_{\text{muestra}}} \quad (\text{A.8})$$

Finalmente, el valor de  $T$  se determina midiendo un estándar de relación isotópica  ${}^{10}\text{Be}_e/{}^9\text{Be}_e$  conocida, ya que si el cátodo contiene sólo material estándar, la relación isotópica medida y la real se relacionan de la siguiente manera:

$$\frac{{}^{10}\text{Be}_e^{\text{med}}}{{}^9\text{Be}_e^{\text{med}}} = T \frac{{}^{10}\text{Be}_e}{{}^9\text{Be}_e} \quad (\text{A.9})$$

La diferencia con la expresión (A.1) se debe a que el material estándar no es procesado en el laboratorio como si lo son las muestras y el blanco ( ${}^{10}\text{Be}_q=0$ ) y su relación

isotópica es lo suficientemente alta como para despreciar el aporte de los eventos que contribuyen al término  $^{10}\text{Be}_f$ , además de que por supuesto no contiene material portador ( $^{10}\text{Be}_p = ^9\text{Be}_p = 0$ ).



---

# B

## Procedimientos químicos

### B.1 Lixiviación de sedimentos

1. Homogeneizar las muestras en vasos de polipropileno de 100 ml utilizando agua ultra pura y una pequeña varilla plástica.
2. Colocar en un horno a 80 °C hasta llevarlas a sequedad.
3. Tomar 3 g de cada muestra y colocarlo en tubos falcon de 150 ml.
4. Preparar 750 ml de 0,4 M  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$  25 % HOAc agregando 2,1 gramos de  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$  en 187,5 ml de HOAc y 562,5 ml de  $\text{H}_2\text{O}$ .
5. Agregar a cada tubo falcon 60 ml de solución 0,4 M  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$  25 % HOAc, y en un tubo extra a ser utilizado como blanco.
6. Realizar la lixiviación de las muestras utilizando agitador magnético en cada una de ellas en dos etapas: la primera de 1 hora a 90 °C y la segunda de 7 horas a 95 °C.
7. Remover el agitador magnético, centrifugar los tubos, y trasvasar el sobrenadante a nuevos tubos falcon de 150 ml.
8. Lavar tres veces con 8 ml de solución 0,4 M  $\text{NH}_2\text{OH}\cdot\text{HCl}$  25 % HOAc en cada tubo, centrifugando cada vez y agregando la fase líquida al nuevo tubo falcon.
9. Pesar aproximadamente 500 mg de portador (solución 1.000 ppm, correspondientes a 500  $\mu\text{g}$  de Be) una vez por cada muestra y agregar en vasos de teflón de 150 ml.
10. Agregar a cada uno de los vasos los lixiviados de las muestras presentes en los falcon de 150 ml y practicar a cada uno 3 lavados con  $\text{HNO}_3$  5 %.
11. Llevar a sequedad el contenido de los 8 vasos de teflón cubriendo cada uno de ellos con su correspondiente tapa separadas del vaso por herraduras de teflón.
12. Llevar a sequedad tres veces más agregando en cada una 5 ml de  $\text{HNO}_3$  concentrado.

13. Estando completamente seco, agregar 50 gotas de HCl 7,1 M y se dejar reposar una hora.
14. Trasvasar el contenido de los vasos de teflón a tubos falcon de 15 ml y realizar tres lavados con 25 gotas de HCl 7,1 M de cada vaso, sin preocuparse por la parte sólida ya que tanto Be como Mn deberían estar en solución.
15. En este punto puede aparecer un precipitado que debe descartarse transfiriendo el sobrenadante a un nuevo falcon de 15 ml.
16. Agrega  $\text{NH}_3$  25 % (aproximadamente la misma cantidad que de ácido) hasta llevar a  $\text{pH} \sim 9$  (basta con oler amoníaco para estar seguros porque es una solución *buffer* que regula a ese  $\text{pH}$ ).
17. Centrifugar durante 5 minutos a  $\sim 4000$  rpm.
18. Separar rápidamente el sobrenadante donde se encuentra el Mn y realizar tres lavados del precipitado usando agua a  $\text{pH} \sim 8-9$  (200 ml de  $\text{H}_2\text{O}$  con 2 gotas de  $\text{NH}_3$  25 %) que también se agregan a los nuevos tubos de 15 ml donde se colocó la parte líquida con Mn.
19. Dejar reposar de un día para el otro permitiendo el intercambio de oxígeno con la atmósfera para posibilitar una precipitación retardada del Mn que aparecerá como un aceite negrozco en la superficie del líquido.
20. Recuperar el precipitado con 3 ml de 10,2 M HCl (HCl 32 %) para luego pasar por una columna de intercambio aniónico.

## B.2 Marcha de cationes

### Columna de intercambio aniónica

1. Colocar agua en la columna y luego teflón fritado junto a la canilla.
2. Con la columna llena de agua, agregar la resina dejando salir algo de agua hasta llegar a los 20 cm de altura en una columna de 1 cm de diámetro.
3. Pasar 20 ml de  $\text{H}_2\text{O}$  para lavar la columna.
4. Pasar 20 ml de 10,2 M de HCl para activarla y en adelante no se puede detener la marcha.
5. Colocar los 2 ml de solución con la muestra obtenida en la etapa anterior.
6. Agregar 0,5 ml 10,2 M de HCl proveniente de un lavado.
7. Agregar 1 ml 10,2 M de HCl para fijar la muestra.
8. Pasar 17 ml 10,2 M de HCl para eluir Be y Al.

9. Pasar 110 ml 7,1 M de HCl para eluir Mn.
10. Agregar 17 ml de NH<sub>3</sub> 25 % a la solución eluida con Be y Al para precipitarlos como hidróxidos.
11. Descartar el sobrenadante y retomar el precipitado con 2 ml 1M HCl.

#### Columna de intercambio catiónico

1. Colocar agua en la columna y luego el teflón fritado junto a la canilla.
2. Con la columna llena de agua, agregar la resina dejando salir algo de agua hasta llegar a los 20 cm de altura en una columna de 1 cm de diámetro.
3. Pasar 20 ml de H<sub>2</sub>O para lavar la columna
4. Pasar 20 ml de 1 M de HCl para activarla y en adelante no se puede detener la marcha.
5. Colocar los 2 ml de solución con la muestra obtenida en la etapa anterior.
6. Agregar 0,5 ml 1 M de HCl proveniente de un lavado.
7. Agregar 1 ml 1 M de HCl para fijar la muestra.
8. Pasar 39 ml 1 M de HCl para eluir B.
9. Pasar 110 ml 1M de HCl para eluir Be. Solución 4,5 M de HCl eluye Al.
10. Llevar casi a sequedad lo eluido en el paso anterior.
11. Retomar haciendo tres lavados con gotas de HCl 7,1 M hasta totalizar 4 ml.
12. Agregar aproximadamente 2 ml NH<sub>3</sub> 25 % para precipitar Be(OH)<sub>2</sub>.
13. Descartar el sobrenadante y realizar tres lavados del precipitado con 5 ml de agua pH ~ 8 - 9 que también se descartan.

### B.3 Oxidación del material y producción de cátodos

**Calcinación** Como se ha mencionado en la sección 2.4, la extracción de Be y Mn se ve altamente favorecida cuando estos elementos se encuentran en el cátodo como óxidos en lugar de su forma metálica. Los procedimientos descriptos hasta este punto permiten extraer y concentrar los elementos de la matriz original, sin embargo, su forma química luego de la precipitación es la de hidróxido. Para obtener óxido de berilio (BeO) a partir de su hidróxido (Be(OH)<sub>2</sub>) se calina la muestra a 900 °C.

1. Colocar en crisoles de cuarzo el precipitado obtenido luego de la columna de intercambio catiónico.
2. Llevar a sequedad a temperaturas menores a los 100 °C.

3. Colocar en una mufla y realizar una rampa de 1 hora hasta 900 °C, temperatura a la que debe mantenerse por un lapso de 2 horas.

Supresión del Cr por precipitación del MnO<sub>2</sub> Luego extraer el Mn de la muestra es necesario mejorar la supresión química del Cr. Para ello se practican repetidas precipitaciones de su óxido. A continuación el procedimiento utilizado:

1. Llevar a sequedad el Mn obtenido en las etapas anteriores y agregar 5 ml de HNO<sub>3</sub>, volver a llevar a sequedad. Repetir este paso 2 veces.
2. Agregar 5 ml de H<sub>2</sub>O + 5 ml de HNO<sub>3</sub> + 0,5 ml de H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> (30 %) y colocar en una plancha durante una hora tapado a 175 °C.
3. Agregar una pequeña cantidad de HClO<sub>3</sub>.
4. Continuar con el vaso de teflón cerrado una hora más, ahora a 150 °C.
5. Trasvasar el volumen a un tubo falcon de 15 ml y centrifugar, precipitando el Mn.
6. Con el sobrenadante se repite el procedimiento anterior hasta que la solución pierda su color amarillento para verse violácea.
7. Lavar tres veces con agua ultra pura el total del precipitado final eliminando posibles excedentes de KClO<sub>3</sub>.
8. Colocar en un tubo *ependorf* de 2 ml y luego en el horno a 80 °C hasta secarse completamente.
9. Para favorecer la conversión a óxido se puede calcinar a 500 °C durante un par de horas.

# C

## Aceleradores utilizados

Para el desarrollo de esta tesis doctoral se realizaron mediciones en cinco aceleradores diferentes, uno de ellos, el acelerador TANDAR, cuya descripción fue presentada en el capítulo 9. Una breve descripción técnica de los otros aceleradores utilizados se dará a continuación, incluyendo en cada caso un esquema de la instalación.

### C.1 SARA - Centro Nacional de Aceleradores, Sevilla

SARA (*Spanish Accelerator for Radionuclides Analyses*) es un acelerador compacto, multi-elemental tipo tandetrón de 1 MV de tensión máxima de terminal y fue el más chico de los utilizados en esta tesis. Esta máquina fue diseñada no sólo para detectar isótopos de baja masa como el  $^{10}\text{Be}$  o  $^{14}\text{C}$  (Ruiz-Gómez et al., 2010) sino también elementos pesados tales como  $^{129}\text{I}$  y Pu (Chamizo et al., 2008a).

La fuente de iones de SARA cuenta con una rueda de cátodos con capacidad para 200 muestras y el detector utilizado al final de la línea es una cámara de ionización con un ánodo segmentado en dos partes provista de una ventana de nitruro de silicio de 75 nm de espesor.

Al igual que otras máquina modernas, la alternancia entre el isótopo estable y el radioisótopo de interés se realiza automáticamente cada segundo de medición, dedicando una décima parte del tiempo al estable y el tiempo restante al radionucleido. Esto es posible gracias a un sistema conocido como *bouncer* ubicado antes del imán inyector. Este sistema permite aplicar una diferencia de potencial del orden de los 100 kV al haz que cambia la energía de los aniones provistos por la fuente de iones de modo tal que, sin modificar el imán inyector, sea el isótopo estable o el radionucleido quien doble correctamente.

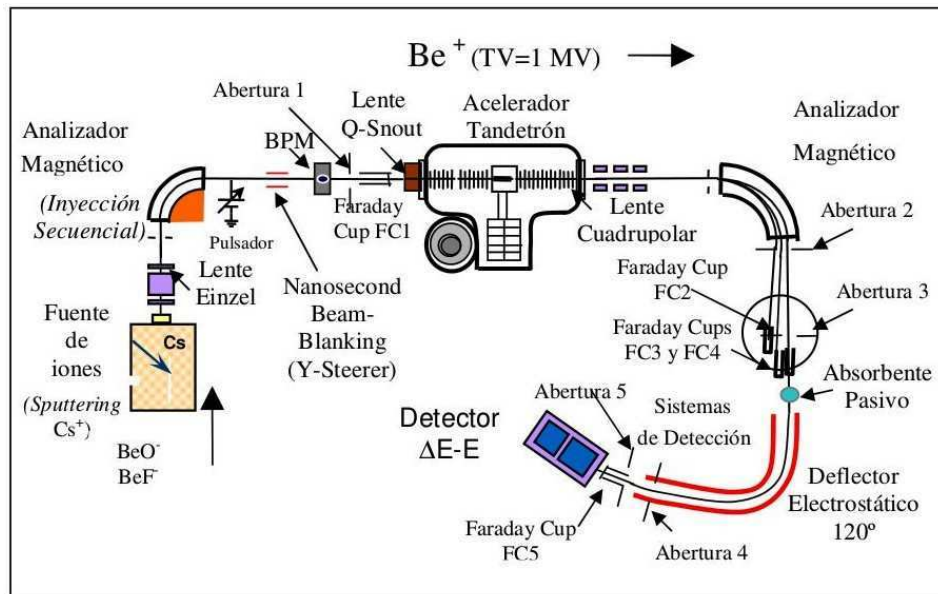


Figura C.1: Esquema del acelerador SARA.



Figura C.2: Fotografía del acelerador SARA.

Tampoco es necesario modificar la tensión de terminal ni el imán analizador. La medición de la corriente del haz estable debe realizarse en un copa de Faraday ubicada fuera de línea (ver figura C.1).

Para medir  $^{10}\text{Be}$  se sintoniza el estado de carga 1+ luego del *stripper* gaseoso de Ar ubicado en el terminal y utilizando un absorbente pasivo de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de 150 nm de espesor se degrada la energía de las partículas. Luego, con un deflector electrostático de  $120^\circ$  se consigue suprimir un importante fracción de los átomos de  $^{10}\text{B}$  (técnica descrita en la sección 3.3).

La principal contribución al fondo de medición en esta instalación proviene de los átomos de  $^9\text{Be}$  dispersados en el detector. El mejor nivel de fondo alcanzado fue de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 4,2 \pm 1,8 \times 10^{-14}$  (Chamizo et al., 2008b)

SARA es uno de los cuatro aceleradores con que cuenta el Centro Nacional de Aceleradores de Sevilla, España, entre ellos MiCaDas (*Mini radioCarbon Dating System*) dedicado exclusivamente la datación por  $^{14}\text{C}$ .

## C.2 VERA - *Vienna Institute*

VERA (*Vienna Environmental Research Accelerator*) es un acelerador de 3 MV de máxima tensión de terminal y se encuentra ubicado en la ciudad de Vienna, Austria. Es una instalación de referencia a nivel mundial ya que ha sabido explotar al máximo la configuración del acelerador para abarcar la mayor cantidad de radionucleidos posibles. Actualmente, salvo medidas de  $^{53}\text{Mn}$  y  $^{60}\text{Fe}$ , VERA es capaz de cuantificar prácticamente cualquier otro radionucleido de interés en AMS (Steier et al., 2004). Las sensibilidades alcanzadas en esta instalación son también referencia a nivel mundial, ya que han demostrado que 3 MV de terminal es suficiente para conseguir excelentes niveles de fondo para todos los radionucleidos accesibles con relativamente bajas energías. En particular, el nivel alcanzado para  $^{10}\text{Be}$  equivale a  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be} < 5 \times 10^{-14}$  (Steier et al., 2004). La supresión física del  $^{10}\text{Be}$  en esta instalación se consigue degradando la energía de las partículas con una folia de nitruro de silicio de 500 nm y utilizando luego el imán selector de las diferentes líneas experimentales para sintonizar correctamente el  $^{10}\text{Be}$  y suprimir una fracción del  $^{10}\text{Be}$ .



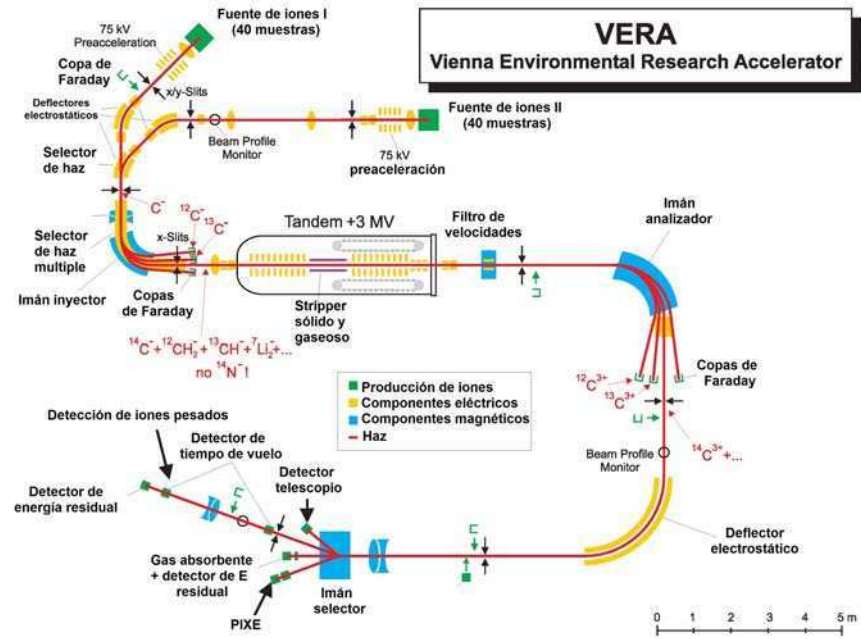


Figura C.3: Esquema del acelerador VERA.



Figura C.4: Fotografía del acelerador VERA.

### C.3 DREAMS - *Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf*

DREAMS (*DREsden Accelerator Mass Spectrometry*) es un acelerador de 6 MV tipo tandetrón desarrollado por *High Voltage*. Es una instalación moderna que no se encuentra completamente dedicada a AMS sino que solo realiza medidas por esta técnica una semana por mes aproximadamente.

Para llevar a cabo mediciones de la relación isotópica  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$  se suele utilizar una tensión de terminal de 4,5 MV, extrayendo BeO de un cátodo en el que este material se mezcla con Nb. Se sintoniza el estado de carga 2+ que corresponde a una energía de 10,7 MeV. Para suprimir la interferencia de  $^{10}\text{Be}$  se interpone en el haz una folia de nitruro de silicio de  $1\mu\text{m}$  de espesor. A continuación, el haz debe doblar por un deflector electrostático de  $35^\circ$  donde se reduce la presencia de  $^{10}\text{Be}$  en el haz. La sensibilidad alcanzada para el radionucleido  $^{10}\text{Be}$  es de  $4,5 \times 10^{-16}$  (Akhmadaliev et al., 2013). En la figura C.5 se presenta un esquema de la instalación.

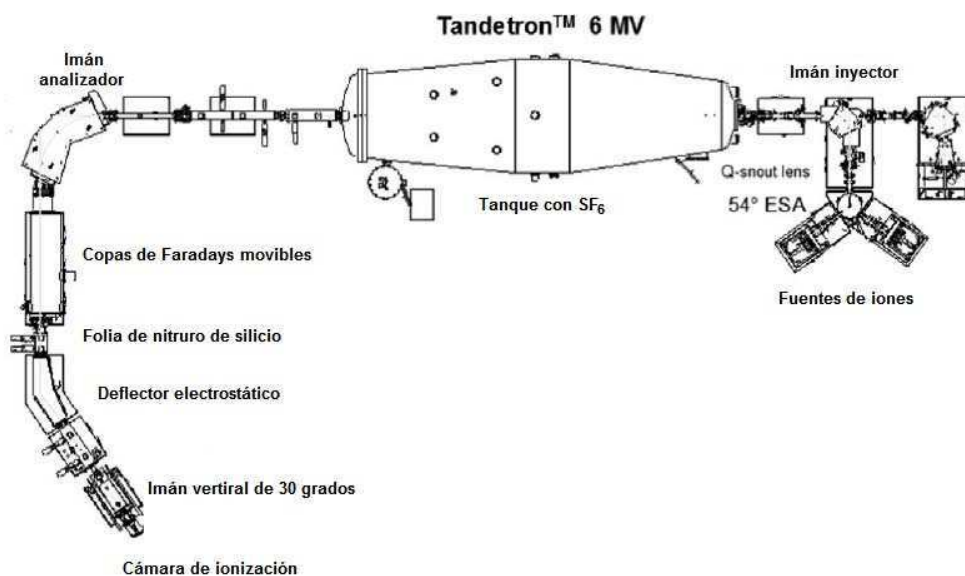


Figura C.5: Esquema del acelerador DREAMS.



Figura C.6: Fotografía del acelerador DREAMS.

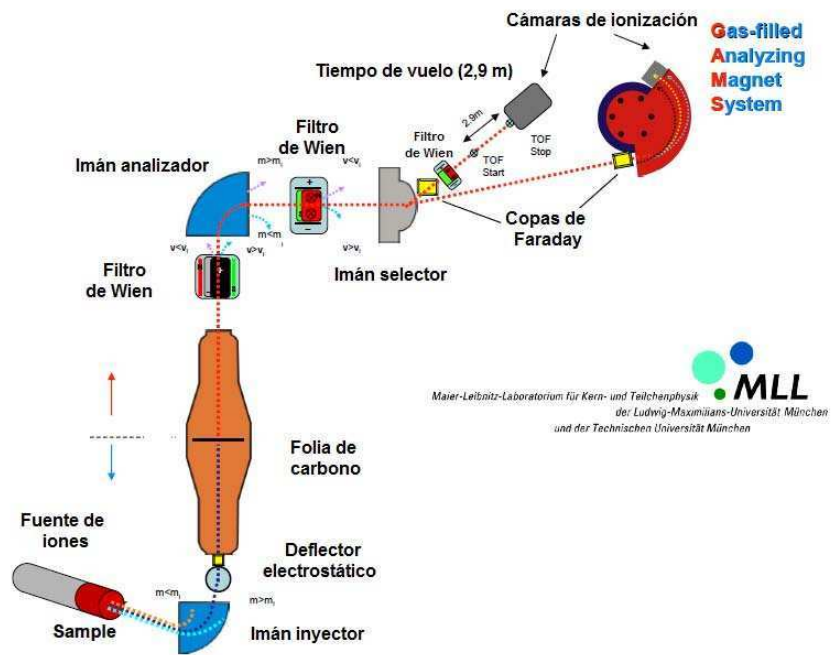


Figura C.7: Esquema del acelerador del *Maier-Leibnitz-Laboratorium*.

#### C.4 MLL - *Maier-Leibnitz-Laboratorium*

Este laboratorio cuenta con una máquina de 14 MV de tensión nominal de terminal y es una de las dos facilidades en el mundo capaz de determinar la relación isotópica  $^{53}\text{Mn}/^{55}\text{Mn}$  a niveles por debajo de  $10^{-13}$  (Knie et al., 1997, Poutivtsev et al., 2010), la otra se encuentra en Canberra, Australia (Gladkis et al., 2007).

Además de la capacidad de alcanzar tensiones de terminal por encima de los 11 MV, lo que otorga a esta instalación el potencial para determinar relaciones isotópicas de  $^{53}\text{Mn}$  y  $^{60}\text{Fe}$  es el sistema GAMS (Knie et al., 1997), en el cual se implementa la técnica de Imán lleno de Gas para diferenciar isóbaros. Su utilización en esta tesis fue oportunamente descrita en la sección 6.5. En la figura C.7 se presenta un esquema de la instalación.

Como puede verse en el esquema, la línea de tiempo de vuelo, usualmente utilizada para la medición de actínidos, cuenta con un total de tres filtros de Wien, mientras que la línea donde se encuentra el sistema GAMS puede hacer uso de dos de ellos. Ambas líneas disponen de una cámara de ionización al final como detector utilizado para la identificación de partículas.

En la figura C.8 se presenta una fotografía del tanque de aceleración, que a diferencia del que posee el acelerador TANDAR, está dispuesto de forma horizontal, como en la mayoría de los aceleradores tándem. La distribución del haz a las diferentes líneas experimentales se realiza variando el campo de un imán selector (ver C.7).



**Figura C.8:** Fotografía del acelerador del *Maier-Leibnitz-Laboratorium*.

	SARA	VERA	DREAMS	MLL	TANDAR
Tensión de Terminal	1 MV	3 MV	6 MV	14 MV	20 MV
Ubicación	Sevilla	Viena	Dresden	Munich	Buenos Aires
Institución	CNA	VERA	HZDR	TUM	CNEA
Constructora	HV	NEC	HV	HV	NEC
Año de construcción	2005	1999	2007	1970	1985
Radionucleido medido	$^{10}\text{Be}$	$^{10}\text{Be}$	$^{10}\text{Be}$	$^{53}\text{Mn}$	$^{10}\text{Be}$

# D

## Sobre los sedimentos submarinos

### D.1 Litoestratigrafía

Durante la expedición del ODP, Behrmann et al. (1992) clasificaron los sedimentos extraídos del sitio 860 en tres unidades de acuerdo a su litología, contenido de microfósiles y sobre la base de su modo de depositación.

- Unidad I: 0 - 87,7 mbfm (metros bajo el fondo del mar). Compuesta por limo arcilloso hasta arcilla limosa con nanofósiles y con intercalaciones de limo gradado y arenas, y una unidad de arena masiva de 10 m de espesor en la base. Esta unidad es el resultado de una mezcla entre *fallout* hemipelágico y el depósito de limo, arcilla y arena producto de corrientes turbidíticas de grano fino y baja densidad. También reconocen la depositación de arenas gradadas producto de corrientes turbidíticas de alta densidad.
- Unidad II: 87,7 - 242,5 mbfm. Compuesto por arcillita hasta arcillita limosa más areniscas y delgados bancos de conglomerados. Esta unidad es predominantemente el resultado de depositación hemipelágica, aunque su relativamente bajo contenido de microfósiles sugiere que podrían haber habido corrientes turbidíticas homogéneas de lodo.
- Unidad III (Subunidad A): 242,5-309,8 mbfm. Compuesta por limolita arcillosa, arcillita limosa con o sin nanofósiles más arcillita limo-arenosa con delgados bancos de conglomerados. Esta unidad también parece haber sido formada en gran medida por depositación hemipelágica.

Información sobre las restantes subunidades de la unidad III ver Behrmann et al. (1992).

## D.2 Bioestratigrafía

En la tabla D.1 se clasifican los primeros 250 metros de muestras extraídas del sitio 860 del ODP en las zonas de radiolarios, foraminíferos y nanofósiles. Esta tabla se confeccionó con la información detallada por el grupo de paleontólogos de la expedición del ODP (Behrmann et al., 1992). Sin embargo, en una revisión del artículo, la asignación de zonas y edades correspondientes a las especies de microfósiles encontrados se realizó de acuerdo a los trabajos posteriores de Berggren et al. (1995) y Sanfilippo y Nigrini (1998). También se tuvo en cuenta en esta nueva descripción que desde 2009, el límite Plioceno/Pleistoceno fue modificado al valor actual de 2,58 Ma.

En lo concerniente a las muestras estudiadas en esta tesis, los foraminíferos no han sido de gran ayuda para datar estas muestras ya que su presencia es pobre o rara en las unidades estudiadas. Sin embargo, la aparición y ausencia de la especie *Globoconella inflata* fue utilizada para establecer en forma tentativa el límite entre el Plioceno temprano y tardío (3,6 Ma) que se corresponde con el límite entre la zona *Globorotalia crassaformis* (también presente en algunos tramos) y la zona *Globoconella inflata*. Los radiolarios en cambio fueron útiles para establecer cotas a las edades de las muestras 1H, 2H, 4H, y 19X.

La información más relevante en lo que a la datación de las muestras se refiere, que pudo extraerse de los nanofósiles, radica en los límites impuestos por los cambios de zona. Si bien Behrmann et al. (1992) establecieron el límite entre Plioceno y Pleistoceno (entonces correspondiente a 1,6 Ma.) entre las muestra 009X y 010X ubicada a 70 metros de profundidad, tres años más tarde, las paleontólogas de la expedición publicaron un artículo donde indican que dicho límite se encontraba aproximadamente unos 60 metros más profundo, entre las muestras 016X y 017X a 130 metros. Spiegler et al. (1995) llegaron a esta conclusión basadas principalmente en la primera ocurrencia de *Gephyrocapsa oceánica* (< 1,6 Ma., (Berggren et al., 1985)) que aproximadamente coincide con la última ocurrencia de *Cyclococcolithus macintyrei* y la extinción del género *Discoasters* lo cual convencionalmente definía la frontera entre Plioceno y Pleistoceno. Además, la primer ocurrencia de *Cyclococcolithus macintyrei* (> 1,6 Ma, (Berggren et al., 1985)) tiene lugar en la muestra 017X. Esto fue también confirmado por Locker (1995) quien estudió la correlación entre nanofósiles y flagelados silíceos. De modo que los sedimentos a 130 metros de profundidad puede ser relativamente bien datados en 1,6 Ma. La frontera NN19/NN20 se ubicó entre las muestras 003H y 004H correspondientes al Pleistoceno tardío según Locker (1995).

Se observaron diatomeas sólo en las muestras 001H y 020X dentro del intervalo de interés. De este modo, la muestra 001H se asignó a la zona *Nitzschia reinholdii* principalmente por la aparición del espécimen *Nitzschia fossilis* cuya última ocurrencia está datada en 0,68 Ma (Miettinen, 2015). La ocurrencia de la especie *N. kerguelensis* en

**Tabla D.1:** Zonas de radiolarios, nanofósiles y foraminíferos asignadas a las primeras 31 muestras extraídas por el ODP del sitio 860 de acuerdo a los microfósiles reportados por Behrmann et al. (1992) y las posteriores indicaciones publicadas por Spiegler et al. (1995).

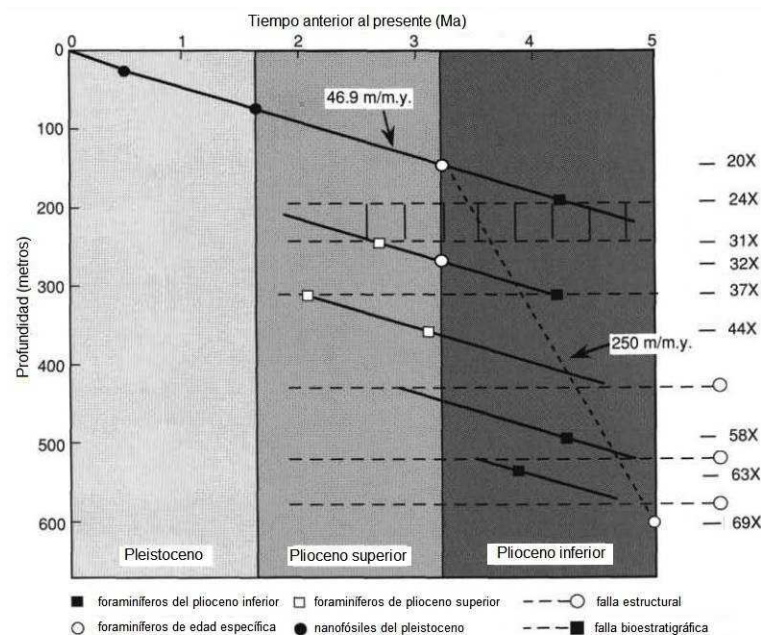
Muestra	Radiolarios		Nanofosiles		Foraminíferos
	Zona	Edad (Ma) <sup>1</sup>	Zona	Edad (Ma) <sup>2</sup>	Zona
<b>1H*</b>	RN13-RN17	<1,74	NN21	<0,27	T. tasaensis
<b>2H*</b>					
3H	RN12-RN17	<2,74	NN20	<0,47	<i>Globoconella Inflata</i>
<b>4H*</b>	RN10-RN17	<4,19	NN19	<1,6	
5H					
6H					
<b>7H*</b>					
8P					
9X					
<b>10X*</b>	NN19	<1,6			
11X					
12X					
13X					
<b>14X*</b>					
<b>15X*</b>	RN10-RN17	<4,19			<i>Globoconella Inflata</i>
16X					
<b>17X*</b>			NN16-18	>1,6	<i>Globorotalia crassaformis</i>
18X	RN10-RN17	<4,19			
<b>19X*</b>	RN10-RN11	2,74 - 4,19			
20X	RN12-RN14	0,47 - 2,74			
21X					
<b>22X*</b>					
23X					
24X					
<b>25X*</b>					
26X					
27X					
<b>28X*</b>					
<b>29X*</b>	RN12-RN17	<2,74	NN16-18	>1,6	<i>Globoconella Inflata</i>
30X					
<b>31X*</b>					



la muestra 020X les permitió asignar una edad de 2,7 Ma a la misma. Behrmann et al. (1992) sugieren que esta muestra debe ser más antigua que su equivalente en profundidad en el sitio 859.

### D.3 Tasa de sedimentación y fallas

Behrmann et al. (1992) calcularon la tasa de sedimentación del sitio 860 a partir de la datación de algunas de las muestras extraídas. Para ello utilizaron la ocurrencia de determinadas especies de nanofósiles y foraminíferos. En la figura D.1 se reproduce el gráfico que presentaron indicando la profundidad de los sedimentos en función de su edad estimada mediante el uso de microfósiles. Según estos autores, la tasa de sedimentación correspondiente a los primeros 200 metros es constante y equivale a 46,9 m/Ma. Si bien este valor se indica con tres cifras significativas, no reportan su incerteza. Sin embargo, el trabajo publicado tres años más tarde por Spiegler et al. (1995) indica que el segundo punto utilizado en la recta de ajuste debería corresponder a una profundidad 60 metros mayor.



**Figura D.1:** Estimaciones de la tasa de acumulación de sedimento para el Sitio 860 y sugerencia de fallas inversas. Dataciones realizadas a partir de nanofósiles y foraminíferos. Extraído y adaptado de Behrmann et al. (1992).

Por debajo de los 200 metros, en cambio, los autores proponen la ocurrencia de cinco fallas inversas que resultan en una tasa de sedimentación efectiva de 250 m/Ma. La

primera de estas fallas es identificada por la edad de la muestra 031X, que resultó ser menor que 24X y 20X a pesar de ser estas últimas menos profundas. Spiegler et al. (1995) señalan además que si bien los nanofósiles no dan cuenta de una posible inversión de edad antes de la muestra 030X, si se observa un significativo cambio en su abundancia en la muestra 031X.



# E

## Sobre el polvo interplanetario

**Tabla E.1:** Tabla de radios y masas de IDP con su probabilidad relativa de ingreso a nuestro planeta acompañados de sus tiempos de vuelo y concentración de  $^{53}\text{Mn}$  al llegar a la Tierra.

Parámetros de la IDP			Concentración/kg		Tiempo de
radio ( $\mu\text{m}$ )	masa ( $\mu\text{g}$ )	probabilidad	dpm	$10^{13}$ átomos	vuelo (k.a.)
6,7	0,003	0,0025	4,9	1,4	72
9,8	0,010	0,0081	7,2	2,0	105
14	0,032	0,013	11	3,0	155
21	0,10	0,025	15	4,3	227
31	0,32	0,042	22	6,3	333
46	1,0	0,073	33	9,1	490
67	3,2	0,12	47	13	719
81	5,6	0,15	56	16	871
98	10	0,16	68	19	1056
119	18	0,16	81	23	1279
145	32	0,12	96	27	1549
175	56	0,81	114	32	1877
212	100	0,038	134	38	2275

**Tabla E.2:** Flujo global de polvo interplanetario reportado por diferentes autores. Extraído de Plane (2012).

<b>Técnica</b>	<b>Flujo (t/día)</b>	<b>Referencia</b>	<b>Potencial problema de la técnica</b>
Observación de la nube de polvo Zodiacal	270	Nesvorný et al. (2010)	Necesita ser acotado con radares terrestres
Exposición de larga duración	$110 \pm 55$	Love y Brownlee (1993)	Sensible a la distribución de velocidades
Radares de alto rendimiento	$5 \pm 2$	Mathews et al. (2001)	Sesgo en la velocidad/rango de masa selectivo
Radares meteóricos convencionales	44	Hughes (1978)	Extrapolación, masa selectiva, rango de velocidades
Modelado de la capa de Na	$20 \pm 10$	Plane (2004)	Sensible a la difusión del transporte vertical
Modelado de la capa de Fe	6	Gardner et al. (2011)	Depende del transporte vertical
Fe/Mg en estratos y sulfatos	22-104	Cziczo et al. (2001)	Los datos limitan la extensión geográfica
Mediciones de extinción Óptica	10-40	Hervig et al. (2009)	Índice de refracción de las partículas

Continuación Tabla E.2.

<b>Técnica</b>	<b>Flujo (t/día)</b>	<b>Referencia</b>	<b>Potencial problema de la técnica</b>
Fe en hielo Antártico	15 ± 5	Lanci et al. (2007)	Muy poca deposición húmeda por nieve
Fe en hielo de Groenlandia	175 ± 68	Lanci y Kent (2006)	Intercezas transporte atmosférico y deposición
Ir y Pt en hielo de Groenlandia	214 ± 82	Gabrielli et al. (2004)	Intercezas transporte atmosférico y deposición
Os en sedimentos marinos profundos	101 ± 36	Peucker-Ehrenbrink (1996)	Se centra en las corrientes oceánicas
Ir en sedimentos marinos profundos	240	Wasson y Kyte (1987)	Se centra en las corrientes oceánicas



# Bibliografía

- Akhmadaliev, S., Heller, R., Hanf, D., Rugel, G., y Merchel, S. (2013). The new 6 MV AMS-facility DREAMS at Dresden. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 294:5–10.
- Allmon, W. D., Rosenberg, G., Portell, R. W., y Schindler, K. S. (1993). Diversity of atlantic coastal plain mollusks since the pliocene. *Science*, 260(5114):1626–9.
- Alvarez, D. E., Fernández Niello, J. O., di Tada, M., Ferrero, A. M. J., Martí, G. V., Capurro, O. A., Pacheco, A. J., Testoni, J. E., Abriola, D., Etchegoyen, A., Achterberg, E., y Ramírez, M. (1997). The AMS program at the TANDAR accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:39–42.
- Alvarez, L. W. y Cornog, R. (1939).  $^3\text{He}$  in Helium. *Physical Review*, 56:379–379.
- Auer, M. (2008). *Applications of  $^{26}\text{Al}$  in atmospheric research (Ph.D. thesis)*. University of Wien.
- Behrmann, J. y Kopf, A. (2001). Balance of tectonically accreted and subducted sediment at the Chile Triple Junction. *International Journal of Earth Sciences*, 90:753–768.
- Behrmann, J. H., Lewis, S. D., Cande, S. C., Musgrave, R., Bangs, N., Boden, P., Brown, K., Collombat, H., Didenko, A. N., Didyk, B. M., Froelich, P. N., Golovchenko, X., Forsythe, R., Kurnosov, V., Lindsleygriffin, N., Marsaglia, K., Osozawa, S., Prior, D., Sawyer, D., Scholl, D., Spiegler, D., Strand, K., Takahashi, K., Torres, M., Vegafaunder, M., Vergara, H., y Wasada, A. (1994). Tectonics and geology of spreading ridge subduction at the chile triple junction - a synthesis of results from leg-141 of the ocean drilling program. *Geologische Rundschau*, 83(4):832–852.
- Behrmann, J. H., Lewis, S. D., y Musgrave, R. (1992). 7.site 860 - shipboard scientific party. *Proceedings of the Ocean Drilling Program, Initial Reports*, 141:159–238.
- Benítez, N., Maíz-Apellániz, J., y Canelles, M. (2002). Evidence for Nearby Supernova Explosions. *Physical Review Letters*, 88(8):081101.



- Bennett, C. L., Beukens, R. P., Clover, M. R., Gove, H. E., Liebert, R. B., Litherland, A. E., Purser, K. H., y Sondheim, W. E. (1977). Radiocarbon Dating Using Electrostatic Accelerators: Negative Ions Provide the Key. *Science*, 198:508–510.
- Berggren, W. a., V., K. D., Flynn, J. J., y Van Couvering, J. (1985). Neogene geochronology and chronostratigraphy. *Geological Society of London*.
- Berggren, W. A., V., K. D., Swisher, C., y Aubry, M.-P. (1995). A revised cenozoic geochronology and chronostratigraphy. *Society for Sedimentary Geology*.
- Bethe, H. y Ashkin, J. (1953). Passage of radiations through matter. *Experimental Nuclear Physics*, pages 1953–59.
- Betz, H.-D. (1972). Charge States and Charge-Changing Cross Sections of Fast Heavy Ions Penetrating Through Gaseous and Solid Media. *Reviews of Modern Physics*, 44:465–539.
- Bibron, R., Chesselet, R., Crozaz, G., Leger, G., Mennessier, J. P., y Picciotto, E. (1974). Extra-terrestrial  $^{53}\text{Mn}$  in Antarctic ice. *Earth and Planetary Science Letters*, 21:109–116.
- Bourles, D., Raisbeck, G. M., y Yiou, F. (1989).  $^{10}\text{Be}$  and  $^9\text{Be}$  in marine sediments and their potential for dating. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 53:443–452.
- Braucher, R., Benedetti, L., Bourles, D., Brown, E., y Chardon, D. (2004). Use of in situ-produced  $^{10}\text{Be}$  in carbonate-rich environments: A first attempt. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69:1473–1478.
- Brownlee, D. E., Bates, B., y Schramm, L. (1997). The elemental composition of stony cosmic spherules. *Meteoritics and Planetary Science*, 32:157–175.
- Burns, J. A., Lamy, P. L., y Soter, S. (1979). Radiation forces on small particles in the solar system. *Icarus*, 40:1–48.
- Cande, S. C. y Leslie, R. B. (1986). Late Cenozoic tectonics of the Southern Chile Trench. *Journal of Geophysical Research*, 91:471–496.
- Chamizo, E., Enamorado, S. M., García-León, M., Suter, M., y Wacker, L. (2008a). Plutonium measurements on the 1 MV AMS system at the Centro Nacional de Aceleradores (CNA). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 266:4948–4954.
- Chamizo, E., López-Gutiérrez, J. M., Ruiz-Gómez, A., Santos, F. J., García-León, M., Maden, C., y Alfimov, V. (2008b). Status of the compact 1 MV AMS facility at the

- Centro Nacional de Aceleradores (Spain). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 266:2217–2220.
- Coats, R. R. (1962). Magma type and crustal structure in the Aleutian arc. *Washington DC American Geophysical Union Geophysical Monograph Series*, 6:92–109.
- Cox, D. P. y Snowden, S. L. (1986). Perspective on the local interstellar medium. *Advances in Space Research*, 6:97–107.
- Cremonese, G., Borin, P., Martellato, E., Marzari, F., y Bruno, M. (2012). New Calibration of the Micrometeoroid Flux on Earth. *The Astrophysical Journal, Letters*, 749:L40.
- Cziczo, D. J., Thomson, D. S., y Murphy, D. M. (2001). Ablation, Flux, and Atmospheric Implications of Meteors Inferred from Stratospheric Aerosol. *Science*, 291:1772–1775.
- Dhomse, S. S., Saunders, R. W., Tian, W., Chipperfield, M. P., y Plane, J. M. C. (2013). Plutonium-238 observations as a test of modeled transport and surface deposition of meteoric smoke particles. *Geophysical Research Letters*, 40:4454–4458.
- Dreyer, B., Morris, J., y Gill, J. (2010). Incorporation of subducted slab-derived sediment and fluid in arc magmas: B–be–10be–end systematics of the kurile convergent margin, russia. *Journal of Petrology*, 51(8):1761–1782.
- Feige, J., Wallner, A., Fifield, L. K., Korschinek, G., Merchel, S., Rugel, G., Steier, P., Winkler, S. R., y Golser, R. (2013). AMS measurements of cosmogenic and supernova-ejected radionuclides in deep-sea sediment cores. In *European Physical Journal Web of Conferences*, volume 63 of *European Physical Journal Web of Conferences*, page 3003.
- Feldman, G. J. y Cousins, R. D. (1998). Unified approach to the classical statistical analysis of small signals. *Phys. Rev. D*, 57:3873–3889.
- Fernández Niello, J. O., Abriola, D., Alvarez, D. E., Capurro, O. A., di Tada, M., Etchegoyen, A., Ferrero, A. M. J., Martí, G. V., Pacheco, A. J., Testoni, J. E., y Korschinek, G. (1996). Developments of AMS at the TANDAR accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 117:156–160.
- Fernández Niello, J. O., Arazi, A., Capurro, O. A., Abriola, D., Ferrero, A. M. J., Gladkis, L., Liberman, R. G., Martí, G. V., Pacheco, A. J., Ramírez, M., y Testoni, J. E. (2004). Spurious ionic charge states in a tandem accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 223:242–246.
- Fernández Niello, J. O., Liberman, R. G., Capurro, O. A., Ferrero, A. M. J., Martí, G. V., Pacheco, A. J., Abriola, D., Ramírez, M., Testoni, J. E., Achterberg, E., Alvarez,

- D. E., y di Tada, M. (2000). The AMS system and research program at the TANDAR laboratory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:91–94.
- Fifield, L. K., Ophel, T. R., Allan, G. L., Bird, J. R., y Davie, R. F. (1990). Accelerator mass spectrometry at the Australian National University's 14UD accelerator: experience and developments. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 52:233–237.
- Fifield, L. K., Tims, S. G., Fujioka, T., Hoo, W. T., y Everett, S. E. (2010). Accelerator mass spectrometry with the 14UD accelerator at the Australian National University. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:858–862.
- Fitoussi, C., Raisbeck, G. M., Knie, K., Korschinek, G., Faestermann, T., Goriely, S., Lunney, D., Poutivtsev, M., Rugel, G., Waelbroeck, C., y Wallner, A. (2008). Search for Supernova-Produced Fe60 in a Marine Sediment. *Physical Review Letters*, 101(12):121101.
- Fuchs, B., Breitschwerdt, D., de Avillez, M. A., Dettbarn, C., y Flynn, C. (2006). The search for the origin of the Local Bubble redivivus. *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society*, 373:993–1003.
- Fulmer, C. B. y Cohen, B. L. (1958). Equilibrium Charges of Fission Fragments in Gases. *Physical Review*, 109:94–99.
- Gabrielli, P., Barbante, C., Plane, J. M. C., Varga, A., Hong, S., Cozzi, G., Gaspari, V., Planchon, F. A. M., Cairns, W., Ferrari, C., Crutzen, P., Cescon, P., y Boutron, C. F. (2004). Meteoric smoke fallout over the Holocene epoch revealed by iridium and platinum in Greenland ice. *Nature*, 432:1011–1014.
- Gardner, C. S., Chu, X., Espy, P. J., Plane, J. M. C., Marsh, D. R., y Janches, D. (2011). Seasonal variations of the mesospheric Fe layer at Rothera, Antarctica (67.5°S, 68.0°W). *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 116:2304.
- Gill, J. B. (1981). *Orogenic Andesites and Plate Tectonics*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York.
- Gladkis, L. G., Fifield, L. K., Morton, C. R., Barrows, T. T., y Tims, S. G. (2007). Manganese-53: Development of the AMS technique for exposure-age dating applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 259:236–240.
- Greenfield, S. (1994). Inductively coupled plasmas in atomic fluorescence spectrometry. a review. *J. Anal. At. Spectrom.*, 9:565–592.

- Gómez-Guzmán, J., Bishop, S., Faestermann, T., Famulok, N., Fimiani, L., Hain, K., Jahn, S., Korschinek, G., Ludwig, P., y Rodrigues, D. (2015). Accretion rate of extraterrestrial  $^{41}\text{Ca}$  in Antarctic snow samples. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*.
- Heikkilä, U., Beer, J., y Feichter, J. (2009). Meridional transport and deposition of atmospheric  $^{10}\text{Be}$ . *Atmospheric Chemistry & Physics*, 9:515–527.
- Hervig, M. E., Gordley, L. L., Deaver, L. E., Siskind, D. E., Stevens, M. H., Russell, J. M., Bailey, S. M., Megner, L., y Bardeen, C. G. (2009). First Satellite Observations of Meteoric Smoke in the Middle Atmosphere. *Geophysical Research Letters*, 36:18805.
- Hickey-Vargas, R., Sun, M., López-Escobar, L., Moreno-Roa, H., Reagan, M. K., Morris, J. D., y Ryan, J. G. (2002). Multiple subduction components in the mantle wedge: Evidence from eruptive centers in the Central Southern volcanic zone, Chile. *Geology*, 30:199.
- Honda, M. y Imamura, M. (1971). Half-Life of  $\text{Mn}^{53}$ . *Physical Review C: Nuclear Physics*, 4:1182–1188.
- Hughes, D. W. (1978). *Meteors*, pages 123–185.
- Imamura, M., Inoue, T., Nishizumi, K., y Tanaka, S. (1979).  $^{53}\text{Mn}$  in Deep-Sea Sediment Cores - An Indicator of Past Solar Activity. *International Cosmic Ray Conference*, 2:304.
- Jackson, J. B. C., Jung, P., Coates, A. G., y Collins, L. S. (1993). Diversity and extinction of tropical american mollusks and emergence of the isthmus of Panama. *Science*, 260(5114):1624–6.
- Jackson, J. B. C., Jung, P., Coates, A. G., y Collins, L. S. (1994). Constancy and change of life in the sea. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 344:55–60.
- Kilian, R. y Behrmann, J. H. (2003). Geochemical constraints on the sources of southern Chile trench sediments and their recycling in arc magmas of the southern Andes. *Journal of the Geological Society*, 160:57–70.
- Knie, K., Faestermann, T., y Korschinek, G. (1997). AMS at the Munich gas-filled analyzing magnet system GAMS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 123:128–131.
- Knie, K., Faestermann, T., Korschinek, G., Rugel, G., Rühm, W., y Wallner, C. (2000). High-sensitivity AMS for heavy nuclides at the Munich Tandem accelerator. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 172:717–720.

- Knies, K., Korschinek, G., Faestermann, T., Dorfi, E. A., Rugel, G., y Wallner, A. (2004).  $^{60}\text{Fe}$  Anomaly in a Deep-Sea Manganese Crust and Implications for a Nearby Supernova Source. *Physical Review Letters*, 93(17):171103.
- Knies, K., Korschinek, G., Faestermann, T., Wallner, C., Scholten, J., y Hillebrandt, W. (1999). Indication for Supernova Produced  $^{60}\text{Fe}$  Activity on Earth. *Physical Review Letters*, 83:18–21.
- Knoll, G. F. (2000). *Radiation detection and measurement*.
- Korschinek, G., Bergmaier, A., Faestermann, T., Gerstmann, U. C., Knies, K., Rugel, G., Wallner, A., Dillmann, I., Dollinger, G., von Gostomski, C. L., Kossert, K., Maiti, M., Poutivtsev, M., y Remmert, A. (2010). A new value for the half-life of  $^{10}\text{Be}$  by Heavy-Ion Elastic Recoil Detection and liquid scintillation counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:187–191.
- Kortenkamp, S. J. y Dermott, S. F. (1998). Accretion of Interplanetary Dust Particles by the Earth. *Icarus*, 135:469–495.
- Kutschera, W., Billquist, P. J., Frekers, D., Henning, W., Jensen, K. J., Xiuzeng, M., Pardo, R., Paul, M., Rehm, K. E., Smither, R. K., Yntema, J. L., y Mausner, L. F. (1984). Half-life of  $^{60}\text{Fe}$ . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 5:430–435.
- Lal, D. y Peters, B. (1967). Cosmic ray produced radioactivity on the earth. In Sitte, K., editor, *Kosmische Strahlung II / Cosmic Rays II*, volume 9 / 46 / 2 of *Handbuch der Physik / Encyclopedia of Physics*, pages 551–612. Springer Berlin Heidelberg.
- Lanci, L. y Kent, D. V. (2006). Meteoric smoke fallout revealed by superparamagnetism in Greenland ice. *Geophysical Research Letters*, 33:13308.
- Lanci, L., Kent, D. V., y Biscaye, P. E. (2007). Meteoric smoke concentration in the Vostok ice core estimated from superparamagnetic relaxation and some consequences for estimates of Earth accretion rate. *Geophysical Research Letters*, 34:10803.
- Leya, I., Lange, H.-J., Neumann, S., Wieler, R., y Michel, R. (2000). The production of cosmogenic nuclides in stony meteoroids by galactic cosmic ray particles. *Meteoritics and Planetary Science*, 35:259–286.
- Locker, S. (1995). 16. Silicoflagellates, ebridians, and actiniscidians from pliocene and quaternary sediments off southern Chile, ODP Leg 141. *Proceedings of the Ocean Drilling Program, Initial Reports*, 141:223–233.

- Love, S. G. y Brownlee, D. E. (1993). A Direct Measurement of the Terrestrial Mass Accretion Rate of Cosmic Dust. *Science*, 262:550.
- Lyubetskaya, T. y Korenaga, J. (2007). Chemical composition of Earth's primitive mantle and its variance: 1. Method and results. *Journal of Geophysical Research (Solid Earth)*, 112:B03211.
- Maíz-Apellániz, J. (2001). The Origin of the Local Bubble. *The Astrophysical Journal, Letters*, 560:L83–L86.
- Martinod, J., Husson, L., Roperch, P., Guillaume, B., y Espurt, N. (2010). Horizontal subduction zones, convergence velocity and the building of the Andes. *Earth and Planetary Science Letters*, 299:299–309.
- Masarik, J. y Beer, J. (1999). Simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere. *Journal of Geophysical Research*, 104:12099–12112.
- Masarik, J. y Beer, J. (2009). An updated simulation of particle fluxes and cosmogenic nuclide production in the Earth's atmosphere. *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 114:11103.
- Mathews, J. D., Janches, D., Meisel, D. D., y Zhou, Q.-H. (2001). The micrometeoroid mass flux into the upper atmosphere: Arecibo results and a comparison with prior estimates. *Geophysical Research Letters*, 28:1929–1932.
- McHargue, L. R. y Damon, P. E. (1991). The global beryllium 10 cycle. *Reviews of Geophysics*, 29:141–158.
- Merchel, S. y Herpers, U. (1999). An Update on Radiochemical Separation Techniques for the Determination of Long-Lived Radionuclides via Accelerator Mass Spectrometry. *Radiochimica Acta*.
- Middleton, R. (1990). *A negative-ion cookbook*. Philadelphia.
- Miettinen, A. (2015). Diatoms. In Harff, J., Meschede, M., Petersen, S., y Thiede, J., editors, *Encyclopedia of Marine Geosciences*, pages 1–7. Springer Netherlands.
- Morris, J. y Tera, F. (1989).  $^{10}\text{Be}$  and  $^9\text{Be}$  in mineral separates and whole rocks from volcanic arcs: Implications for sediment subduction. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 53:3197–3206.
- Morris, J. D., Leeman, W. P., y Tera, F. (1990). The subducted component in island arc lavas: constraints from Be isotopes and B-Be systematics. *Nature*, 344:31–36.

- Mughabghab, S. (2003). Thermal neutron capture cross sections resonance integrals and g-factors. *IAEA*, 440.
- Müller, A. M., Christl, M., Lachner, J., Suter, M., y Synal, H.-A. (2010). Competitive  $^{10}\text{Be}$  measurements below 1 MeV with the upgraded ETH-TANDY AMS facility. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:2801–2807.
- Muller, R. A. (1977). Radioisotope Dating with a Cyclotron. *Science*, 196:489–494.
- Nelson, D. E., Korteling, R. G., y Stott, W. R. (1977). Carbon-14: Direct Detection at Natural Concentrations. *Science*, 198:507–508.
- Nesvorný, D., Jenniskens, P., Levison, H. F., Bottke, W. F., Vokrouhlický, D., y Gounelle, M. (2010). Cometary origin of the zodiacal cloud and carbonaceous micrometeorites. implications for hot debris disks. *The Astrophysical Journal*, 713(2):816.
- Palme, H. y Jones, A. (2003). Solar System Abundances of the Elements. *Treatise on Geochemistry*, 1:711.
- Pedersen, S. A. S. (2014). Architecture of glaciotectonic complexes. *Geosciences*, 4(4):269.
- Peucker-Ehrenbrink, B. (1996). Accretion of extraterrestrial matter during the last 80 million years and its effect on the marine osmium isotope record. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60:3187–3196.
- Plane, J. M. C. (2004). A time-resolved model of the mesospheric Na layer: constraints on the meteor input function. *Atmospheric Chemistry & Physics*, 4:627–638.
- Plane, J. M. C. (2012). Cosmic dust in the earth's atmosphere. *Chemical Society Reviews*, Vol. 41, p. 6507-6518, 2012, 41:6507–6518.
- Poutivtsev, M., Dillmann, I., Faestermann, T., Knie, K., Korschinek, G., Lachner, J., Meier, A., Rugel, G., y Wallner, A. (2010). Highly sensitive AMS measurements of  $^{53}\text{Mn}$ . *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:756–758.
- Rauscher, T., Heger, A., Hoffman, R. D., y Woosley, S. E. (2002). Nucleosynthesis in Massive Stars with Improved Nuclear and Stellar Physics. *The Astrophysical Journal*, 576:323–348.
- Reedy, R. C. (1989). Cosmogenic-Nuclide Production Rates in Interstellar Grains. In *Lunar and Planetary Science Conference*, volume 20 of *Lunar and Planetary Science Conference*, page 888.
- Robertson, H. P. (1937). Dynamical Effects of Radiation in the Solar System. *Royal Astronomical Society*.

- Rodrigues, D., Arazi, A., Abriola, D., de Barbará, E., Capurro, O., Cardona, M. A., Gallardo, J., Gollan, F., Hojman, D., Marti, G., Negri, A., Fernandez Niello, J., Pacheco, A., Samsolo, N., Togneri, M., y Villanueva, D. (2015). Espectrometría de Masas con el Acelerador TANDAR: Mediciones de  $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ . *Asociación Argentina de Tecnología Nuclear*.
- Rodrigues, D., Arazi, A., Marti, G. V., y Korschinek, G. (2014). Aplicación de la técnica de Espectrometría de Masas con Aceleradores en el estudio de la dinámica de sedimentos submarinos. *Anales de la Asociación de Física Argentina*, 25:51–55.
- Rodrigues, D., Merchel, S., Rugel, G., Arazi, A., Marti, G. V., y Korschinek, G. (2016a). Dynamics of marine sediments studied through  $^{10}\text{Be}$ . *En preparación*.
- Rodrigues, D., Negri, A., Balpardo, C., Fernandez Niello, J., Arazi, A., Marti, G. V., Korschinek, G., Ludwig, P., y Gómez Guzmán, J. M. (2016b).  $^{53}\text{Mn}$  deposition on Earth and its extraterrestrial implications. *Enviado*.
- Rückamp, M., Braun, M., Suckro, S., y Blindow, N. (2011). Observed glacial changes on the King George Island ice cap, Antarctica, in the last decade. *Global and Planetary Change*, 79:99–109.
- Ruderman, M. A. (1974). Possible Consequences of Nearby Supernova Explosions for Atmospheric Ozone and Terrestrial Life. *Science*, 184:1079–1081.
- Rugel, G., Faestermann, T., Knie, K., Korschinek, G., Poutivtsev, M., Schumann, D., Kivel, N., Günther-Leopold, I., Weinreich, R., y Wohlmuther, M. (2009). New Measurement of the Fe60 Half-Life. *Physical Review Letters*, 103(7):072502.
- Ruiz-Gómez, A., Chamizo-Calvo, E., López-Gutierrez, J. M., García-León, M., Müller, A. M., y Christl, M. (2010). On the measurement of  $^{10}\text{Be}$  on the 1 MV compact AMS system at the Centro Nacional de Aceleradores (Spain). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:733–735.
- Sanfilippo, A. y Nigrini, C. (1998). Code numbers for Cenozoic low latitude radiolarian biostratigraphic zones and GRTS conversion tables. *Marine Micropaleontology*.
- Schaefer, J. M., Faestermann, T., Herzog, G. F., Knie, K., Korschinek, G., Masarik, J., Meier, A., Poutivtsev, M., Rugel, G., Schlüchter, C., Serifiddin, F., y Winckler, G. (2006). Terrestrial manganese-53 A new monitor of Earth surface processes. *Earth and Planetary Science Letters*, 251:334–345.
- Schiwietz, G. y Grande, P. (2001). Improved charge-state formulas. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials*



- and Atoms*, 175–177(0):125 – 131. Twelfth International Conference of Ion Beam Modification of Materials.
- Schmidt-Böcking, H. (1978). Penetration of heavy ions through matter. In Bethge, K., editor, *Experimental Methods in Heavy Ion Physics*, volume 83 of *Lecture Notes in Physics*, Berlin Springer Verlag, page 81.
- Sigmarsson, O., Condomines, M., Morris, J. D., y Harmon, E. S. (1990). Uranium and  $^{10}\text{Be}$  enrichments by fluids in Andean arc magmas. *Nature*, 346:163–165.
- Smith, R. K. y Cox, D. P. (2001). Multiple Supernova Remnant Models of the Local Bubble and the Soft X-Ray Background. *The Astrophysical Journal, Supplement*, 134:283–309.
- Spiegler, D. y Musgrave, R. (1995). Correlation of calcareous nannoplankton and planktonic foraminifer biostratigraphy off the coast of southern Chile. *Proceedings of the Ocean Drilling Program, Scientific Results*, 141(14):193–211.
- Spiegler, D., Müller, C., Locker, S., y Schönfeld, J. (1995). Biostratigraphic and paleoceanographic synthesis of ODP Leg 141, off southern Chile. *Proceedings of the Ocean Drilling Program, Scientific Results*, 141(30):373–377.
- Steier, P., Golser, R., Kutschera, W., Priller, A., Vockenhuber, C., y Winkler, S. (2004). VERA, an AMS facility for all isotopes. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 223:67–71.
- Tebbens, S. F., Cande, S. C., Kovacs, L., Parra, J. C., Labrecque, J. L., y Vergara, H. (1997). The Chile ridge: A tectonic framework. *Journal of Geophysical Research*, 102:12.
- Tera, F., Brown, L., Morris, J., Sacks, I. S., Klein, J., y Middleton, R. (1986). Sediment incorporation in island-arc magmas: Inferences from  $^{10}\text{Be}$ . *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50:535–550.
- Trappitsch, R. y Leya, I. (2013). Cosmogenic production rates and recoil loss effects in micrometeorites and interplanetary dust particles. *Meteoritics and Planetary Science*, 48:195–210.
- Völker, D., Kutterolf, S., y Wehrmann, H. (2011). Comparative mass balance of volcanic edifices at the southern volcanic zone of the Andes between 33° S and 46° S. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*, 205:114–129.
- Wasson, J. T. y Kallemeyn, G. W. (1988). Compositions of chondrites. *Royal Society of London Philosophical Transactions Series A*, 325:535–544.

- Wasson, J. T. y Kyte, F. T. (1987). Comment on the letter: On the influx of small comets into the earth's atmosphere. II - Interpretation. *Geophysical Research Letters*, 14:779.
- Watson, A. J., Bakker, D. C. E., Ridgwell, A. J., Boyd, P. W., y Law, C. S. (2000). Effect of iron supply on Southern Ocean CO<sub>2</sub> uptake and implications for glacial atmospheric CO<sub>2</sub>. *Nature*, 407:730–733.
- Ziegler, J. F., Ziegler, M. D., y Biersack, J. P. (2010). SRIM - The stopping and range of ions in matter. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 268:1818–1823.