



UNIVERSIDADE  
ESTADUAL DE LONDRINA

---

ISAIAS VENANCIO DA LUZ FILHO

**NÍVEIS DE RADIAÇÃO EM AMOSTRAS DE FOSFATO  
BICÁLCICO (DCP) E RAÇÕES BOVINAS E AVÍCOLAS POR  
ESPECTROMETRIA DE RAIOS GAMA**

ISAIAS VENANCIO DA LUZ FILHO

**NÍVEIS DE RADIAÇÃO EM AMOSTRAS DE FOSFATO  
BICÁLCICO (DCP) E RAÇÕES BOVINAS E AVÍCOLAS POR  
ESPECTROMETRIA DE RAIOS GAMA**

Dissertação de Mestrado apresentada ao Curso de Pós-graduação, em Física, da Universidade Estadual de Londrina, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre.

Orientador: Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni.

Co-orientadora: Profa. Dra. Viviane Scheibel

Londrina  
2009

ISAIAS VENANCIO DA LUZ FILHO

**NÍVEIS DE RADIAÇÃO EM AMOSTRAS DE FOSFATO BICÁLCICO  
(DCP) E RAÇÕES BOVINAS E AVÍCOLAS POR ESPECTROMETRIA  
DE RAIOS GAMA**

Dissertação de Mestrado apresentada ao Curso de Pós - graduação, em Física, da Universidade Estadual de Londrina, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre.

**BANCA EXAMINADORA**

---

Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni  
UEL – Londrina – PR

---

Prof. Dr. Avacir Casanova Andrello  
UEL – Londrina – PR

---

Prof. Dr. Marcio Bacchi  
USP – CENA

Londrina, 27 de fevereiro de 2009.

*Ao mais que amigo e mais que irmão Andreas Fuchs (in memorian).*

## **AGRADECIMENTOS**

Agradeço em primeiro lugar a Deus, por se fazer presente e minha vida e me amar como um filho mesmo sem eu merecer, e por sua salvação.

Aos meus pais. Izaias e Ivete, por me amarem, por tudo o que me ensinaram e me ensinam, e porque sem vocês eu não seria quem hoje sou, sendo que o pouco que sou, devo a vocês, assim como lhes devo minha própria vida.

Agradeço também aos meus “pais emprestados”, Gabriel e Etel, por fazerem parte do que hoje sou, por também me amarem como filho mesmo sem eu merecer e por serem meu apoio, meu norte, minha família.

Ao meu orientador, professor Appoloni, por todos os seus ensinamentos nesses três últimos anos, por sua disponibilidade e paciência e por compartilhar comigo parte dos seus conhecimentos me ajudando e estimulando a crescer.

A minha co-orientadora, professora Viviane, por toda a sua dedicação e disponibilidade para comigo e meu trabalho.

Aos colegas e professores do laboratório, especialmente ao Renato, Tiago, Rodrigo e aos professores Avacir e Paulo.

Aos meus irmãos Silas, Tiago e Talita, por me incentivarem, ao meu sobrinho Enzo e aos meus irmãozinhos Victória e Estevão por seus amor e carinho.

Agradeço a minha namorada Cristiane, por seu amor, sua paciência, por compartilhar comigo sua vida e seus sonhos e por fazer da minha vida, ao se fazer presente, bem mais especial, dando-me cada mais motivos para viver, e viver ao seu lado.

Ao CNPq pelo apoio financeiro.

LUZ-FILHO Isaias Venâncio da. **Níveis de radiação em amostras de fosfato bicálcico (DCP) e rações bovinas e avícolas por espectrometria de raios gama.** 2009. p. 105. Dissertação (Mestrado em Física) - Universidade Estadual de Londrina, 2009.

## RESUMO

O presente trabalho tem por objetivo determinar os níveis de radiação existentes em rações bovinas, avícolas e no suplemento alimentar fosfato bicálcico (DCP). Para tal, usou-se a técnica de espectrometria de raios gama, empregando-se um detector HPGe de 66% de eficiência relativa e resolução em energia de 2,03 keV para a linha 1332,46 keV do  $^{60}\text{Co}$ . Estimou-se as atividades dos radionuclídeos  $^{40}\text{K}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , além das séries do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ . O recipiente utilizado para acomodação das amostras foi do tipo béquer Marinelli de 1 L. As atividades da série do  $^{238}\text{U}$  foram determinadas a partir das medidas das atividades dos seus filhos  $^{214}\text{Pb}$  e  $^{214}\text{Bi}$ , e a série do  $^{232}\text{Th}$  teve sua atividade estimada a partir dos valores para seus filhos  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  e  $^{208}\text{Tl}$ . As amostras do DCP e das rações medidas neste trabalho eram comercializadas na cidade de Londrina, Paraná, no segundo semestre do ano de 2007. Dentre as rações, as maiores atividades para o  $^{40}\text{K}$  e para a série do  $^{232}\text{Th}$  foram encontradas nas amostras de ração para gado de leite, sendo estes valores  $402 \pm 14$  Bq/kg para o  $^{40}\text{K}$  e  $1,71 \pm 0,10$  Bq/kg para o  $^{228}\text{Ra}$ . A ração para gado de corte apresentou a maior atividade para a série do  $^{238}\text{U}$ ,  $1,51 \pm 0,93$  Bq/kg para o  $^{226}\text{Ra}$ . Na amostra de DCP, as atividades para  $^{238}\text{U}$ ,  $^{40}\text{K}$  e  $^{232}\text{Th}$  foram respectivamente  $83 \pm 26$ ;  $46,6 \pm 2,8$  e  $7,79 \pm 0,70$  Bq/kg. As rações avícolas apresentaram baixas atividades para as séries do Urânio e Tório. Os valores para o MDA para o  $^{137}\text{Cs}$  variaram de 0,037 a 0,29 Bq/kg. Este trabalho apresenta dados dos níveis de radiação presentes em amostras de rações bovinas e avícolas, animais que, de forma direta ou indireta, fazem parte da dieta humana.

**Palavras-chave:** Espectrometria gama. Fosfato bicálcico (DCP). Ração animal.

LUZ-FILHO Isaias Venâncio da. **Radiation levels in samples of dicalcium phosphate (DCP) and bovine and poultry rations by gamma-rays spectrometry.** 2009. p. 105. Dissertation (MSc. in Physics) – State University of Londrina, 2009.

### ABSTRACT

The objective of the present work is to determine the radiation levels existent in bovine and poultry rations and in the Dicalcium phosphate (DCP) feed supplement. The knowledge of the radiation levels in samples of rations and DCP for cattle is important because they are, in a direct or indirect way, part of the human diet. For this, it was used the gamma-rays spectrometry technique, employing a HPGe detector of 66% of relative efficiency, with an energy resolution of 2.03 keV for the  $^{60}\text{Co}$  1332.46 keV line. It was measured the radioactive activity of the radionuclides  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  and its respective decay series. The accommodation recipient of the samples was a Marinelli beaker of 1 L. The  $^{238}\text{U}$  series activities were calculated through  $^{214}\text{Pb}$  and  $^{214}\text{Bi}$  activities, and the  $^{232}\text{Th}$  series had its activity calculated through the  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  and  $^{208}\text{Tl}$  values. The DCP samples and the rations measured in this work were marketed in Londrina city, Paraná, in the second semester of 2007. Among the rations, the largest  $^{40}\text{K}$  and  $^{228}\text{Ra}$  series activities were found in the ration sample for milk cattle, respectively  $402 \pm 14$  to  $^{40}\text{K}$  and  $1.71 \pm 0.10$  Bq/kg to  $^{228}\text{Ra}$ . The ration for meat cattle presented the largest activity for  $^{238}\text{U}$  series,  $1.51 \pm 0.93$  Bq/kg to  $^{226}\text{Ra}$ . In the DCP sample, the activities for the  $^{238}\text{U}$ ,  $^{40}\text{K}$  and  $^{232}\text{Th}$  were respectively  $83 \pm 26$ ;  $46.6 \pm 2.8$  and  $7.79 \pm 0.70$  Bq/kg. The poultry rations presented low activities for the Uranium and Thorium series. The MDA values for  $^{137}\text{Cs}$  varied from 0.037 to 0.29 Bq/kg.

**Key-words:** Gamma-ray spectrometry. Dicalcium phosphate (DCP). Animal ration.

## LISTA DE FIGURAS

<b>Figura 1</b> – Diagrama de decaimento simplificado para o $^{40}\text{K}$ , adaptado de Durrance (1986).....	32
<b>Figura 2</b> – Seção de choque para a absorção total de fótons para o chumbo, Adaptado de Leo (1994).....	37
<b>Figura 3</b> – Configuração dos componentes eletrônicos que compõem o sistema de detecção .....	45
<b>Figura 4</b> – Foto do sistema de aquisição de dados.....	47
<b>Figura 5</b> – Representação esquemática de um béquer Marinelli de 1 L.....	48
<b>Figura 6</b> – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para frango no início da vida .....	64
<b>Figura 7</b> – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para frango adulto .....	64
<b>Figura 8</b> – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para gado de corte .....	65
<b>Figura 9</b> – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para gado de leite .....	65
<b>Figura 10</b> – Exemplo de espectro obtido para a amostra de fosfato bicálcico (DCP) .....	66
<b>Figura 11</b> – Curva de calibração em eficiência para as amostras de rações .....	67
<b>Figura 12</b> – Curva de calibração em eficiência para as amostras de DCP.....	67
<b>Figura 13</b> – Comparação entre as atividades dos radionuclídeos nas amostras de rações para frango.....	79
<b>Figura 14</b> – Comparação entre as atividades dos radionuclídeos nas amostras de rações para gado .....	79
<b>Figura 15</b> – Comparação das atividades dos radionuclídeos nas rações avícolas e bovinas.....	80
<b>Figura 16</b> – Comparação entre as atividades de $^{226}\text{Ra}$ e $^{228}\text{Ra}$ nas amostras de rações avícolas e bovinas.....	83
<b>Figura 17</b> – Comparação entre as atividades dos radionuclídeos na amostra de DCP .....	85
<b>Figura 18</b> – Comparação das atividades do $^{40}\text{K}$ nas amostras de rações avícolas e bovinas e no fosfato bicálcico (DCP).....	89

## LISTA DE TABELAS

<b>Tabela 1</b>	– Nuclídeos da série do $^{238}\text{U}$ (KAPLAN, 1963; FIRESTONE, 1999).....	26
<b>Tabela 2</b>	– Nuclídeos da série do Tório (KAPLAN, 1963; FIRESTONE, 1999).....	27
<b>Tabela 3</b>	– Radionuclídeos primordiais e suas respectivas características, adaptado de Kathren, (1998).....	31
<b>Tabela 4</b>	– Principais radionuclídeos cosmogênicos e suas respectivas características, adaptado de Kathren, (1998).....	33
<b>Tabela 5</b>	– Equivalência entre atividade específica de radionuclídeos em rochas e concentração de elemento, modificado de Iaea Tecdoc (2003).....	54
<b>Tabela 6</b>	– Atividades de $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ e $^{40}\text{K}$ nas amostras de calibração em eficiência.....	58
<b>Tabela 7</b>	– Atividades de $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ e $^{40}\text{K}$ nas amostras para a validação.....	60
<b>Tabela 8</b>	– Atividades para o $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ e $^{40}\text{K}$ , medidas e previstas nas amostras de validação para as rações.....	69
<b>Tabela 9</b>	– Atividades para o $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ e $^{40}\text{K}$ , medidas e previstas nas amostras de validação para o DCP.....	69
<b>Tabela 10</b>	– Comparação entre $B^1$ e $B^2$ para a amostra de validação para as rações.....	70
<b>Tabela 11</b>	– Comparação entre P e LAP para a amostra de validação para as rações.....	71
<b>Tabela 12</b>	– Comparação entre $B^1$ e $B^2$ para a amostra de validação para o DCP.....	72
<b>Tabela 13</b>	– Comparação entre P e LAP para a amostra de validação para o DCP.....	72
<b>Tabela 14</b>	– Linhas gama em keV usadas para estimar as atividades dos respectivos radionuclídeos em cada uma das amostras.....	74
<b>Tabela 15</b>	– Atividade (A), desvios com 95% de confiança e o MDA para os radionuclídeos medidos nas amostras de ração para frango, em Bq/kg.....	76
<b>Tabela 16</b>	– Atividade (A), desvios com 95% de confiança e o MDA para os radionuclídeos medidos nas rações para gado, em Bq/kg.....	77

<b>Tabela 17</b> – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para o $^{226}\text{Ra}$ e o $^{228}\text{Ra}$ medidos nas amostras de ração avícola, em Bq/kg .....	82
<b>Tabela 18</b> – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para o $^{226}\text{Ra}$ e o $^{228}\text{Ra}$ medidos nas amostras de ração bovina, em Bq/kg.....	82
<b>Tabela 19</b> – Atividade (A), desvios com 95% de confiança e o MDA para os radionuclídeos medidos na amostra de fosfato bicálcico (DCP), em Bq/kg .....	84
<b>Tabela 20</b> – Atividade (A), desvios com 95% de confiança e o MDA para $^{238}\text{U}$ e $^{232}\text{Th}$ medidos na amostra de fosfato bicálcico, em Bq/kg.....	86
<b>Tabela 21</b> – Erro no cálculo da atividade do $^{40}\text{K}$ devido à soma com o pico do $^{228}\text{Ac}$ .....	87
<b>Tabela 22</b> – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e MDA para o $^{40}\text{K}$ nas amostras de rações e no DCP, em Bq/kg.....	88
<b>Tabela 23</b> – Concentrações de Urânio e Tório no DCP, e de Potássio para as amostras de rações e de fosfato bicálcico.....	90
<b>Tabela 24</b> – Comparação entre as concentrações medidas na amostra de DCP e dados da literatura de concentrações em amostras de rochas.....	91
<b>Tabela 25</b> – Comparação das atividades nas amostras de DCP com dados da literatura.....	92
<b>Tabela 26</b> – Linhas gama detectadas na amostra de calibração para as rações.....	101
<b>Tabela 27</b> – Linhas gama detectadas na amostra de calibração para o DCP.....	102
<b>Tabela 28</b> – Comparação entre medições de uma amostra de ração em datas diferentes .....	103
<b>Tabela 29</b> – Comparação entre medições de uma amostra de DCP em datas diferentes .....	104
<b>Tabela 30</b> – Parâmetros para a distribuição de Student para os respectivos graus de liberdade .....	105

## SUMÁRIO

<b>1 INTRODUÇÃO</b> .....	13
<b>2 REVISÃO DE LITERATURA</b> .....	15
<b>3 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA</b> .....	18
3.1 PRINCÍPIOS DA RADIOATIVIDADE .....	18
3.1.1 Conceitos Básicos de Radioatividade .....	18
3.1.2 Tipos de Decaimento Radioativo .....	20
3.1.2.1 Desexcitação gama .....	20
3.1.2.2 Desintegração beta .....	22
3.1.2.3 Desintegração alfa .....	23
3.1.2.4 Captura eletrônica (EC) .....	24
3.1.3 Natureza Estatística do Decaimento Radioativo .....	25
3.1.4 Séries de Decaimento Radioativo .....	25
3.1.5 Desequilíbrio das Séries .....	28
3.1.6 Origem dos Radionuclídeos .....	29
3.1.7 Interação da Radiação com a Matéria .....	33
3.1.7.1 Produção de pares .....	34
3.1.7.2 Espalhamento compton .....	35
3.1.7.3 Efeito fotoelétrico .....	36
3.2 RADIOATIVIDADE EM AMOSTRAS ALIMENTARES ANIMAL .....	37
3.2.1 Radioatividade em Amostras de Ração Animal .....	37
3.2.2 Radioatividade em Amostras de Fosfato Bicálcico (DCP) .....	38
<b>4 MATERIAIS E MÉTODOS</b> .....	40
4.1 ESPECTROMETRIA GAMA .....	40
4.1.1 Detector .....	40
4.1.1.1 Calibração em energia .....	41
4.1.1.2 Eficiência de detecção .....	41
4.1.1.3 Blindagem do sistema de detecção .....	42
4.1.1.4 Resolução em energia .....	43
4.1.2 Eletrônica Nuclear .....	45

4.1.3	Configuração do Sistema de Detecção .....	47
4.1.4	A Geometria Utilizada.....	47
4.2	AMOSTRAGEM.....	48
4.2.1	Descrição das Amostras .....	48
4.2.2	Origem e Importância das Amostras .....	49
4.2.3	Preparação das Amostras .....	49
4.3	ANÁLISE .....	51
4.3.1	Expressão para o Cálculo da Atividade .....	51
4.3.2	Limite Mínimo de Detecção (LLD) e a Atividade Mínima Detectável (MDA). .....	53
4.3.3	Cálculo das Concentrações.....	54
4.3.4	Calibração em Eficiência.....	55
4.3.5	Validação da Metodologia.....	59
<b>5</b>	<b>RESULTADOS E DISCUSSÕES .....</b>	<b>63</b>
5.1	ESPECTROS TÍPICOS OBTIDOS PARA AS RAÇÕES E O DCP .....	63
5.2	CURVA DE EFICIÊNCIA .....	66
5.3	VALIDAÇÃO DA METODOLOGIA .....	68
5.4	ATIVIDADES DOS RADIONUCLÍDEOS .....	73
5.4.1	Atividades nas Amostras de Ração .....	75
5.4.2	Atividades na Amostra de DCP.....	84
5.4.3	Atividade para o $^{40}\text{K}$ .....	86
5.4.3.1	Correção para a Soma das Linhas do $^{40}\text{K}$ (1460,8 keV) e do $^{228}\text{Ac}$ (1459,2 keV).....	86
5.4.4	Cálculo das Concentrações.....	90
5.4.5	Comparação das Atividades com a Literatura.....	91
<b>6</b>	<b>CONCLUSÕES .....</b>	<b>94</b>
	<b>REFERÊNCIAS .....</b>	<b>97</b>
	<b>ANEXOS .....</b>	<b>100</b>

ANEXO 1 – Linhas Gama Detectadas na Amostra de Calibração em Eficiência para as Rações .....	101
ANEXO 2 – Linhas Gama Detectadas na Amostra de Calibração em Eficiência para o Fosfato Bicálcico .....	102
ANEXO 3 – Comparação entre Medidas Realizadas em uma Mesma Amostra em Datas Diferentes .....	103
ANEXO 4 – Parâmetros para Distribuição de Student .....	105

## 1 INTRODUÇÃO

Desde as primeiras décadas do século vinte os riscos que a radioatividade oferece aos homens e aos seres vivos em geral, tem sido uma constante preocupação, motivando assim trabalhos e pesquisas sobre o tema, uma vez que a radioatividade se faz presente de várias formas em nossas vidas. Existe por exemplo, a radioatividade no solo onde pisamos, a radioatividade no ar que respiramos e existe a radioatividade presente até mesmo nos alimentos que comemos.

A ingestão é uma das formas mais comum de entrada de radionuclídeos nos organismos vivos, por isso muitos trabalhos se dedicam a estudar a radioatividade em alimentos e produtos que estão direta ou indiretamente ligados à dieta destes seres, sendo que o principal objetivo desses estudos é com respeito à alimentação humana.

Sobre alimentos e produtos que compõem a dieta do homem, muitas pesquisas vem sendo desenvolvidas com o intuito de monitorar a contaminação radiológica desses elementos dos quais os homens tem se valido, já que os mesmo são absorvidos pelo organismo humano e permanecem nele durante um certo período de tempo.

Uma atenção especial também tem sido dada a estudos com a intenção de estimar a quantidade de radiação existente em produtos que estão indiretamente ligados à dieta humana. Neste grupo destacam-se principalmente as rações e suplementos alimentares dados aos animais criados para o consumo. Uma vez que a população brasileira e mundial é grande consumidora de carne, leite e seus derivados, é de fundamental importância o monitoramento dos níveis de radioatividade a que esses animais estão sendo expostos, uma vez que parte da radioatividade presente nos componentes da alimentação animal será transferida ao próprio animal, sendo ao final possivelmente absorvida pelo homem que se alimenta do mesmo.

As rações desenvolvidas para a alimentação animal são normalmente de origem orgânica e buscam fazer da dieta do animal a mais completa possível no que diz respeito à composição nutricional. Por isso, muitas vezes, são adicionados às mesmas elementos que podem elevar o nível de radionuclídeos contidos nas rações.

Um elemento que precisa estar presente na alimentação animal é o Fósforo. O Fósforo é um dos minerais mais importantes no organismo dos seres vivos, inclusive o homem, e está relacionado com vários processos importantes ao corpo de qualquer animal, como por exemplo, o controle da pressão osmótica e todas as reações metabólicas

(CASACUBERTA, 2007). Isso leva os criadores, ou pelo menos grande parte deles, a fazerem uso de suplementos alimentares para aumentarem a quantidade de Fósforo e outros nutrientes.

Uma fonte de Fósforo bastante usada na criação bovina e avícola é o fosfato bicálcico conhecido DCP (Dicalcium Phosphate). O fosfato bicálcico também é uma fonte de Cálcio e se origina principalmente da reação do ácido fosfórico, vindo das rochas fosfáticas, com o próprio Cálcio.

Devido a processos ligados à extração do ácido fosfórico a partir das rochas fosfáticas, o DCP pode conter uma quantidade considerável de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e suas respectivas séries de decaimentos, além do  $^{40}\text{K}$ .

Assim, é de grande importância estimar os níveis de radiação desses suplementos, para que, em conjunto com as medidas dos níveis de radiação presente nas rações animais, se possa estimar a atividade a que esses seres estão sendo expostos.

## 2 REVISÃO DE LITERATURA

J. D. T. Arruda-Neto, M. V. Tavares e M. Filadelfo (1996) realizaram um estudo da concentração de urânio em amostras de fosfato bicálcico de várias marcas comercializadas no Brasil usando a técnica de eletrofissão/SSNTD (detector nuclear de estado sólido). Neste trabalho foi determinada, a partir dos dados da dieta dos brasileiros, a exposição à radiação dos mesmos. Também foram determinados os fatores de transferência para o animal, para o homem (consumidor) e nos produtos animais, como ovos e leite. As concentrações de Urânio obtidas nas seis amostras de DCP foram respectivamente: 2444 Bq/kg (198,3 ppm), 2154 Bq/kg (174,7 ppm), 1633 Bq/kg (132,5 ppm), 1043 Bq/kg (84,6 ppm), 388 Bq/kg (31,5 ppm) e 26 Bq/kg (2,1 ppm), sendo a incerteza média de todos esses valores menor ou igual a 15%. Também estimou-se, levando em conta o consumo diário de carne de frango, carne bovina, ovos e leite, a quantidade de atividade ingerida por um homem de classe média no Brasil, sendo esta igual a  $9,17 \text{ Bq de } ^{238}\text{U}$ .

C. H. Saueia, B. P. Mazzilli e D. I. T. Favaro (2004) estimaram a concentração de Urânio, Tório e seus respectivos filhos em amostras, provenientes de quatro diferentes indústrias brasileiras de rochas fosfáticas, fosfogesso, ácido fosfórico, DCP e outros fertilizantes fosfatados como: TSP (Triple superphosphate), SSP (single superphosphate), MAP (monoammonium phosphate), DAP (diammonium phosphate), NPK. Os autores usaram espectrometria de raios gama de alta resolução para determinar as concentrações de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{210}\text{Pb}$  e  $^{228}\text{Ra}$ . Para U e Th nas amostras usaram análise por ativação neutrônica. Amostras de fertilizantes que são derivados diretamente do ácido fosfórico, o MAP e DAP, apresentaram concentrações de atividade próximas dos limites de detecção do sistema, sendo para  $^{226}\text{Ra} < 5,0 \text{ Bq/kg}$ , para  $^{228}\text{Ra} < 3,0 \text{ Bq/kg}$  e para  $^{210}\text{Pb} < 19 \text{ Bq/kg}$ . As concentrações de U e Th nesses fertilizantes foram significativamente mais altas, sendo respectivamente 374 e 250 Bq/kg. Para o SSP, TSP e o NPK, que são obtidos a partir da mistura do ácido fosfórico com diferentes quantidades de rocha fosfática e ácido nítrico ( $\text{NH}_3$ ), apresentaram concentrações mais altas de radionuclídeos, sendo estas: 871 Bq/kg para o  $^{226}\text{Ra}$ , 283 Bq/kg para o  $^{228}\text{Ra}$ , 1255 Bq/kg para  $^{210}\text{Pb}$ , 413 Bq/kg para o U e 538 Bq/kg para o Th. As concentrações obtidas para o DCP foram às seguintes:  $148 \pm 17 \text{ Bq/kg}$  para o  $^{40}\text{K}$ ,  $14 \pm 1 \text{ Bq/kg}$  para o  $^{226}\text{Ra}$ ,  $10 \pm 1$

Bq/kg para o  $^{232}\text{Th}$ ,  $17 \pm 2$  Bq/kg para o  $^{228}\text{Ra}$ , sendo que para o  $^{238}\text{U}$  e para o  $^{210}\text{Pb}$ , os valores não ultrapassaram o limite mínimo de detecção.

N. Casacuberta, P. Masqué, J. Garcia-Orellana, J.M. Bruach-Menchén, Sanchez-Cabeza J.A., M. Villa, S. Hurtado, G. Manjón e R.Garcia-Tenorio (2007) estudaram a concentração de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$ , seus respectivos filhos e de  $^{40}\text{K}$  em 16 amostras diferentes de fosfato bicálcico comercializados da região da Catalunha, Espanha, sendo 12 para suplemento alimentar animal e 4 para consumo humano. Dentre as amostras de DCP para alimentação animal, havia um grupo de amostras cujo processo de produção do DCP era digestão da rocha fosfática e um outro grupo cujo processo de obtenção do DCP foi pela mistura da rocha com o ácido fosfórico pronto. Neste trabalho, utilizou-se espectrometria de raios gama para determinar a atividade de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{231}\text{Pa}$ ,  $^{230}\text{Th}$  e  $^{232}\text{Th}$ , bem como  $^{40}\text{K}$  e os radionuclídeos artificiais  $^{60}\text{Co}$  e  $^{137}\text{Cs}$ . Ainda utilizaram a técnica de espectrometria alfa para medir isótopos de Urânio e o  $^{210}\text{Po}$ . Os resultados obtidos para as amostras de DCP para animais foram: a atividade de  $^{238}\text{U}$  variou entre  $999 \pm 16$  e  $1257 \pm 20$  Bq/kg, com um valor médio de  $1125 \pm 106$  Bq/kg; a atividade de  $^{234}\text{U}$  variou de 784 a 1032 Bq/kg, com uma média de  $911 \pm 89$  Bq/kg. O  $^{234}\text{Th}$  apresentou concentrações entre  $688 \pm 7$  e  $1161 \pm 10$  Bq/kg, com a exceção da amostra identificada pelos autores como 8, com uma concentração de  $2200 \pm 20$  Bq/kg. Excluindo-se essa amostra, a concentração média de  $^{234}\text{Th}$  foi  $915 \pm 117$  Bq/kg. Para o  $^{230}\text{Th}$ , as atividades em seis amostras estiveram abaixo do limite de detecção, e nas demais amostras as atividades variaram de  $63 \pm 2$  Bq/kg até  $2500 \pm 200$  Bq/kg. O  $^{226}\text{Ra}$  apresentou atividades médias entre  $96 \pm 21$  Bq/kg e  $13 \pm 5$  Bq/kg. Para o  $^{210}\text{Pb}$  e o  $^{210}\text{Po}$  os valores variaram entre 20 e  $1297 \pm 124$  Bq/kg. Relativo ao  $^{232}\text{Th}$  e sua cadeia de decaimento, nenhuma atividade significativamente alta foi determinada, pois estavam abaixo do limite de detecção para a técnica. O  $^{235}\text{U}$  teve uma atividade média de  $47 \pm 4$  Bq/kg, o  $^{231}\text{Pa}$  mostrou valores que variaram entre 100 e 200 Bq/kg e os valores máximos apresentados para o  $^{40}\text{K}$  foram 60 Bq/kg. Nas amostras de DCP para o consumo humano, nenhum radionuclídeo apresentou níveis acima do limite mínimo de detecção. Os autores mostraram ainda um aumento sistemático nas concentrações nas amostras de DCP, obtidas do ácido fosfórico e um desequilíbrio na série do Urânio, que segundo eles, pode ser devido ao processo de produção do fosfato bicálcico.

M. Azouazi, Y. Ouahidi, S. Fakhi, Y. Andres, J.Ch. Abbe, M. Benmansour (2000) realizaram um trabalho medindo concentrações dos radionuclídeos pertencentes às séries do Urânio, Tório e Actínio em amostras de rochas fosfáticas sedimentares, fosfogesso, ácido fosfórico e água. As medidas foram feitas por espectrometria de raios gama usando um detector HPGe. Os dados obtidos para o conteúdo de Urânio (ppm) foram comparados com medições realizadas nas mesmas amostras usando um método baseado em medidas com um detector de estado sólido (SSNTD). As amostras eram divididas da seguinte forma: três tipos de fosfatos naturais com diferentes níveis de concentrações de apatita, que é uma das principais componentes da rocha fosfática, apenas um tipo de ácido fosfórico e fosfogesso, sete tipos diferentes de rochas fosfáticas do Marrocos, além das várias amostras de água. As concentrações de atividade dos radionuclídeos nos três tipos de fosfato variaram de  $90 \pm 6$  até  $150 \pm 30$  Bq/kg para  $^{235}\text{U}$  e seus filhos, e de  $1540 \pm 20$  até  $2450 \pm 400$  Bq/kg para os radionuclídeos da série do  $^{238}\text{U}$ . Para a série do Tório, as concentrações foram bem mais baixas, estando entre  $5 \pm 2$  até  $32 \pm 3$  Bq/kg. No fosfato com baixa concentração de apatita, o  $^{40}\text{K}$  apresentou uma concentração de  $100 \pm 30$  Bq/kg. As atividades para cada radionuclídeo específico pareceram não variar significativamente de fosfato para fosfato. As amostras de fosfogesso apresentaram concentrações variando de  $60 \pm 10$  até  $120 \pm 40$  Bq/kg para  $^{235}\text{U}$  e seus filhos,  $700 \pm 140$  até  $1420 \pm 330$  Bq/kg para a série do Urânio. Novamente para a série do Tório as concentrações foram bem mais baixas, variando entre  $4 \pm 2$  e  $10 \pm 3$  Bq/kg. Para o ácido fosfórico, a atividade do  $^{235}\text{U}$  foi  $13,5 \pm 4,1$  Bq/kg e para a série do  $^{238}\text{U}$ , entre  $215 \pm 43$  e  $430 \pm 110$  Bq/kg. A atividade do  $^{232}\text{Th}$  foi medida pela concentração do seu filho  $^{212}\text{Pb}$ , sendo esta  $2 \pm 1$  Bq/kg, e para o  $^{40}\text{K}$  foi de  $25 \pm 12$  Bq/kg. A concentração de Urânio nas sete amostras de rochas fosfáticas variou de  $77 \pm 9$  até  $182 \pm 9$  ppm. Comparando-se as concentrações medidas com o detector HPGe e o SSNTD, estas mostraram pouca variação.

### 3 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

#### 3.1 PRINCÍPIOS DA RADIOATIVIDADE

No presente item se discutirá os princípios básicos da radioatividade e os fenômenos que envolvem os processos de decaimentos radioativos, bem como, a interação da radiação com a matéria.

##### 3.1.1 Conceitos Básicos de Radioatividade

Toda a matéria é composta por moléculas, que são entidades eletricamente neutras que possuem mais do que um átomo. A idéia de átomo, quando introduzida no quinto século antes de Cristo pelos filósofos gregos Leucipo e Demócrito, considerava que os mesmos eram indivisíveis, e por isso receberam esse nome, já que o mesmo significa *não-divisível*. A partir dos trabalhos de Joseph John Thomson (1856-1940), ficou provada a existência do elétron, e que o átomo não era mais a menor partícula encontrada. Ele mesmo sugeriu também o primeiro modelo atômico, o qual acabou ultrapassado em virtude de uma série de experimentos desenvolvidos por Ernest Rutherford (1871-1937), enquanto investigava a radioatividade natural. O próprio Rutherford acabou por apresentar um novo modelo atômico mais coerente, onde o átomo era composto por um núcleo central em torno do qual orbitavam os elétrons (TIPLER, 2001).

Tais trabalhos, juntamente com pesquisas contemporâneas realizadas por Henri Becquerel (1852-1908) e pelo casal Curie (PIERRE 1859-1906; MARIA CURIE 1867-1934), impulsionaram o surgimento e o desenvolvimento da física nuclear.

Hoje sabe-se que além dos átomos possuem núcleos, de forma simplificada pode se afirmar que esses núcleos são positivamente carregados, possuem quase a totalidade da massa do átomo e são constituídos por prótons, com carga positiva, e nêutrons, que são partículas sem carga.

Em alguns núcleos atômicos, a relação entre o número de prótons e de nêutrons resulta em uma configuração instável, da qual decorre o processo chamado de

decaimento radioativo. Tal processo é uma perda de massa da parte do núcleo, com o objetivo de recuperar a sua estabilidade, a partir da emissão de algum tipo de radiação.

A radiação nuclear emitida durante o processo de decaimento pode ser de dois tipos diferentes: corpuscular ou eletromagnética. As radiações corpusculares são aquelas que emitem partículas. Quando oriunda do decaimento nuclear, as partículas que podem ser emitidas por esse tipo de radiação são: elétrons, também chamados de partículas beta menos ( $\beta^-$ ); pósitrons, também chamados de beta mais ( $\beta^+$ ), nêutrons (n), prótons (p), partículas alfa ( $\alpha$ ) e íons pesados. As radiações eletromagnéticas nucleares são as radiações conhecidas como gama.

Ao sofrer o decaimento, há uma alteração no núcleo do átomo, como veremos com mais detalhes, este torna-se um radionuclídeo diferente. Então se existe uma dada quantidade inicial de átomos radioativos iguais, essa quantidade variará com o tempo. A equação que rege o processo de decaimento nuclear é a seguinte:

$$N_t = N_0 e^{-\lambda t} \quad (1)$$

Onde  $N_t$  é o número de átomos presentes após um dado tempo  $t$ ,  $N_0$  é o número de átomos presentes no instante  $t = 0$  s e  $\lambda$  é a constante de decaimento do radionuclídeo.

Então, como após decair, um nuclídeo radioativo converte-se em outro, o número de átomos com o passar do tempo vai diminuindo em relação ao número inicial de átomos existentes. Isso pode ser verificado matematicamente, pois na equação 1,  $N_t$  vem do produto de  $N_0$  com uma exponencial negativa. Desta forma, a equação anterior apresenta o número de átomos restantes como função do tempo e expressa a quantidade existente de átomos em um dado tempo  $t$ .

Quando após um dado tempo  $t$ , a quantidade inicial de átomos se reduz pela metade, esse tempo  $t$  é chamado de meia vida do radionuclídeo e escrito como  $t_{1/2}$ .

Quando se efetua o produto  $\lambda N$ , isto fornece a atividade em Bequerel (Bq), que é o número de decaimentos por segundo. Então ao se multiplicar ambos os lados da equação 1 por  $\lambda$ , o resultado apresentará a variação da atividade com o tempo.

$$A_t = A_0 e^{-\lambda t} \quad (2)$$

Onde  $A_t$  é atividade num dado tempo  $t$ ,  $A_0$  é a atividade inicial, quando  $t = 0$ ,  $\lambda$  é a constante de decaimento do radionuclídeo ( $s^{-1}$ ) e  $t$  é o tempo em segundos.

Assim a atividade de uma certa quantidade de átomos radioativos vai diminuindo com o passar do tempo, como acontece com o número de átomos radioativos existentes, pois a atividade é diretamente proporcional ao número de radionuclídeos, já que a mesma é dada por  $\lambda N$ .

### 3.1.2 Tipos de Decaimento Radioativo

Existem vários processos diferentes de decaimento radioativo, dentre os quais se destacam como mais importantes a desintegração beta, a desintegração alfa, a captura eletrônica e a desexcitação gama. Veremos neste item, uma descrição de cada um destes processos de decaimento.

#### 3.1.2.1 Desexcitação gama

A desexcitação gama é uma das formas mais comuns de decaimento radioativo, e se dá através da desexcitação de algum estado nuclear. A maioria dos estados excitados dos núcleos pode decair para estados menos excitados por emissão espontânea de radiação eletromagnética. Esta radiação eletromagnética emitida durante a desexcitação nuclear está localizada na região do espectro eletromagnético onde se denomina radiação gama. Por isso, esse processo recebe o nome de desexcitação gama. A energia da radiação emitida no decaimento é igual diferença de energia entre o estado nuclear inicial e o final, e a separação dos níveis nucleares tem uma energia da ordem de MeV (mega elétrons-volts).

A emissão de radiação gama normalmente se dá após o núcleo passar por uma desintegração  $\beta$  ou  $\alpha$ , as quais serão vistas a seguir. Após um nuclídeo decair por alfa ou beta, o seu núcleo é em geral deixado em um estado excitado, e este então faz a transição para

um estado menos excitado através da emissão de um ou mais raios  $\gamma$  (gama) até atingir o estado fundamental.

A radiação eletromagnética nuclear pode, de um modo geral, ser separada em tipos distintos chamados de radiação multipolar. Tal distinção é feita de acordo com a quantidade de momento angular  $L$  carregado por cada raio gama emitido. A probabilidade total de emissão é a soma das probabilidades parciais de emissão para cada tipo de raio  $\gamma$  (raios  $\gamma$  com diferentes momentos angulares), sendo que o primeiro termo não nulo é o que predomina, pois tem a maior probabilidade de ocorrer.

$$|J_i - J_f| \leq L \leq |J_i + J_f| \quad (3)$$

Na equação 3 acima,  $J_i$  e  $J_f$  são os números quânticos de spin do estado inicial e final do núcleo emissor, respectivamente. As radiações multipolares são caracterizadas pela sua ordem dada por  $2^L$ . A ordem representa o tipo de multipolo que é o emissor da radiação eletromagnética. Para cada valor de momento angular  $L$ , existem duas classes de radiação, a radiação do tipo elétrica (E) e a radiação do tipo magnética (B). Estas radiações diferem pelas suas paridades. A radiação elétrica tem paridade par quando o momento angular é par e tem paridade ímpar quando o momento angular é ímpar. A radiação magnética tem paridade ímpar quando o momento angular é par, e tem paridade par quando o momento angular é ímpar. A paridade para a radiação elétrica é dada por  $(-1)^L$  e para a radiação magnética é dada por  $(-1)^L$  ou  $(-1)^{L+1}$ , onde +1 significa paridade par e -1 significa paridade ímpar.

A emissão de radiação gama ( $\gamma$ ) é o principal processo de liberação de energia em excesso presente no núcleo de um átomo que, como mostrado teoricamente na mecânica quântica e verificado experimentalmente, é feita na forma de radiação eletromagnética com energia definida. Contudo, a estabilidade nuclear não é alcançada apenas com a emissão de radiação gama, pois esta somente libera o excesso de energia. A estabilidade de um núcleo só é alcançada variando a proporção entre nêutrons e prótons. Se um núcleo possui excesso de nêutrons ou de prótons, estará sujeito à desintegração radioativa por emissão de partículas  $\alpha$  ou de partículas  $\beta$ , de modo a alcançar a condição de maior estabilidade. Caso o núcleo excitado possua um excesso de nêutrons, o processo para estabilizá-lo será uma desintegração do tipo  $\beta^-$ . No caso de haver excesso de prótons, existem

três processos de desintegração capazes de trazerem estabilidade ao núcleo, são eles: desintegração  $\beta^+$ , captura eletrônica e desintegração alfa ( $\alpha$ ) para núcleos pesados.

A seguir se verá com mais detalhes como se dá o processo de decaimento por desintegrações beta, alfa e por captura eletrônica.

### 3.1.2.2 Desintegração beta

O processo de desintegração beta se dá quando o núcleo decai por emissão de radiação corpuscular emitindo, neste caso, uma partícula beta. As betas são partículas carregadas, em módulo, com a mesma carga e massa de um elétron. Elas podem ser um elétron ou um pósitron.

Uma vez que a massa do elétron é muito pequena se comparada à do núcleo, a massa nuclear é alterada por uma quantidade muito pequena quando um radionuclídeo se desintegra emitindo uma partícula beta.

As partículas beta são resultantes de interações que ocorrem no interior do núcleo com os nêutrons ou com os prótons, dependendo do nucleon ao qual o núcleo possui em excesso. A partir disso, o decaimento beta pode ser subdividido em beta mais ( $\beta^+$ ) e beta menos ( $\beta^-$ ).

**O decaimento  $\beta^+$**  se dá quando o núcleo possui excesso de prótons. Neste, o próton pode se transformar em um nêutron, como mostra a equação 4.



Onde  $e^+$  e  $\nu$  são respectivamente um pósitron e um neutrino que são emitidos nessa reação. Como um próton converteu-se em um nêutron conforme mostrado acima, o número atômico do núcleo diminui uma unidade após sofrer um decaimento beta mais, já que o número atômico pode ser considerado como o número de prótons possuídos.

O decaimento  $\beta^-$  acontece com o núcleo rico em nêutrons, onde este nucleon se converte em um próton num processo inverso ao do decaimento  $\beta^+$ , conforme é descrito pela equação seguinte:

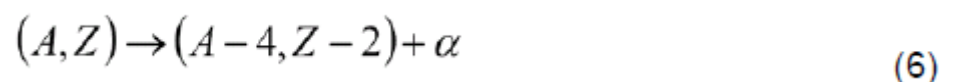


Neste caso,  $e^-$  é um elétron e  $\bar{\nu}$  é um antineutrino, onde ambos são emitidos durante a reação. Como após o decaimento  $\beta^-$  o núcleo ganha um próton, o seu número atômico é aumentado em uma unidade.

### 3.1.2.3 Desintegração alfa

Este tipo de emissão geralmente é oriundo de núcleos pesados que possuem maiores quantidades de nucleons, já que a partícula alfa ( $\alpha$ ) é um núcleo de hélio ( ${}^4\text{He}$ ) constituída de dois prótons e dois nêutrons. Devido à alta energia de ligação das partículas  $\alpha$ , é energeticamente mais vantajoso para o núcleo a emissão de um agrupamento de nucleons como é o caso da alfa, do que a emissão de apenas um nucleon.

Ao contrário do decaimento beta, na emissão de uma partícula alfa altera-se de uma vez o número atômico e o número de massa do núcleo emissor. Dessa forma a desintegração alfa pode ser descrita pela equação 6, onde  $(A;Z)$  é a representação do núcleo pai:



Então o núcleo emissor tem seu número de massa reduzido em 4 unidades e o seu número atômico reduzido em 2 unidades já que a partícula alfa ( $\alpha$ ) possui dois prótons e dois nêutrons.

O espectro de energia da emissão alfa é monoenergético e apresenta um intervalo de 4 a 6 MeV, sendo que as partículas mais energéticas correspondem a núcleos com

maior probabilidade de decair. Por isso a maioria das transições alfa ocorre de um estado excitado diretamente para o estado fundamental do núcleo filho, já que esse processo envolve uma grande quantidade de energia; contudo, a transição de ou para um estado excitado também seja possível.

Devido ao fato de serem providas com uma carga dupla  $+2e$ , as partículas alfa possuem uma alta perda de energia na matéria. Assim, mesmo as mais energéticas não conseguem percorrer um longo caminho até perder toda sua energia, sendo então pequeno o seu alcance. Por exemplo, um partícula alfa que possua energia da ordem de 5 MeV, terá um alcance no ar da ordem de poucos centímetros.

#### 3.1.2.4 Captura eletrônica (EC)

Este tipo de decaimento radioativo é uma alternativa ao processo de desintegração beta mais. Na captura eletrônica um núcleo rico em prótons pode decair a partir da captura de um dos elétrons dos orbitais atômicos, sendo que o elétron capturado é normalmente da camada K, embora exista uma pequena probabilidade do núcleo capturar um elétron da camada L. Após a captura, o núcleo transforma o elétron e um próton nuclear em um nêutron, emitindo um neutrino, conforme mostra a equação 7 a seguir.



Onde  $p$  é o próton,  $e^{-}$  é o elétron capturado,  $n$  é o nêutron e  $\nu$  é o neutrino emitido no processo. Assim, dadas as conhecidas dificuldades em se detectar um neutrino, a captura eletrônica é uma reação que parece muito difícil de ser observada (LEO, 1994). Contudo, a vacância deixada na camada eletrônica pelo elétron capturado pelo núcleo é preenchida com um outro elétron, dando origem a emissão de um raio-X característico ou um elétron Auger, que são radiações bem mais facilmente detectadas e podem ser usadas para indicar que ocorrera a captura eletrônica.

### 3.1.3 Natureza Estatística do Decaimento Radioativo.

Considerando-se que se mediu o número de desintegrações ocorridas em uma dada fonte radioativa durante um certo período de tempo  $t$ , pequeno comparado-se com a meia-vida da fonte. Ao tentar repetir a medida do número de desintegrações da fonte em outro período igual de tempo  $t$ , observar-se-ia uma flutuação no valor de desintegrações entre a primeira e a segunda medida.

Isto se deve ao fato de que o decaimento radioativo tem uma natureza estatística. Dessa forma, o número exato de desintegrações sofridas por uma dada fonte nunca pode ser determinado com exatidão; pode-se apenas determinar a probabilidade de um evento acontecer.

Para estimar a probabilidade  $P$  de decaimento de uma fonte, que tem uma média de contagens no período  $t$  igual a  $m$ , sofra  $n$  desintegrações no mesmo período de tempo  $t$ , usamos a distribuição de Poisson (LEO, 1994):

$$P(n) = \frac{m^n}{n!} \exp(-m) \quad (8)$$

### 3.1.4 Séries de Decaimento Radioativo

Muitas vezes, um dado núcleo decai dando origem a um outro núcleo também radioativo, que por sua vez pode ainda decair para um novo núcleo que também seja radioativo e assim por diante até que chegue a um núcleo estável, cessando assim esta cascata de decaimentos. A esse tipo de configuração dá-se o nome de cadeias ou séries de decaimentos.

Na natureza nós encontramos três grandes cadeias de decaimentos ainda existentes. As duas mais importantes e significativas devido sua abundância na natureza são a série do Urânio e a série do Tório, que possuem respectivamente uma abundância natural de 99,27% e 100%. A terceira série é a do Actínio, que começa com o  $^{235}\text{U}$  e sua abundância natural é de apenas 0,7%.

A série do Urânio tem início com o radionuclídeo  $^{238}\text{U}$  e por isso ele é chamado de pai da série. Esta cadeia começa com o decaimento do pai da série para o nuclídeo  $^{234}\text{Th}$ , e seu último nuclídeo é o  $^{206}\text{Pb}$ , que é estável.

A tabela 1 mostra os nuclídeos participantes da série do  $^{238}\text{U}$  com suas respectivas meias-vida e o tipo de partícula emitida no decaimento.

**Tabela 1** – Nuclídeos da série do  $^{238}\text{U}$  (KAPLAN, 1963; FIRESTONE, 1999).

Elemento	Desintegração	Meia-vida	Energia/Partícula
$^{92}\text{U}^{238}$	$\alpha$	$4,5 \times 10^9$ a	4,2 MeV
$^{90}\text{Th}^{234}$	$\beta$	24,1 d	190 keV
$^{91}\text{Pa}^{234}$	$\beta$	1,18 min 6,7 h	2,32 MeV 1,13 MeV
$^{92}\text{U}^{234}$	$\alpha$	$2,5 \times 10^5$ a	4,768 MeV
$^{90}\text{Th}^{230}$	$\alpha$	$8 \times 10^4$ a	4,68 MeV
$^{88}\text{Ra}^{226}$	$\alpha$	1620 a	4,777 MeV
$^{86}\text{Em}^{222}$	$\alpha$	3,82 d	5,486 MeV
$^{84}\text{Po}^{218}$	$\alpha, \beta$	3,05 min	$\alpha$ : 5,998 MeV
$^{82}\text{Pb}^{214}$	$\beta$	26,8 min	700 keV
$^{85}\text{At}^{218}$	$\alpha$	1,5-2 s	6,63 MeV
$^{83}\text{Bi}^{214}$	$\alpha, \beta$	19,7 min	$\alpha$ : 5,51 MeV $\beta$ : 3,17 MeV
$^{84}\text{Po}^{214}$	$\alpha$	$1,64 \times 10^{-4}$ s	7,683 MeV
$^{81}\text{Tl}^{210}$	$\beta$	1,32 min	1,9 MeV
$^{82}\text{Pb}^{210}$	$\beta$	19,4 a	17 keV
$^{83}\text{Bi}^{210}$	$\beta$	5 d	1,155 MeV
$^{84}\text{Po}^{210}$	$\alpha$	138,3 d	5,3 MeV
$^{81}\text{Tl}^{206}$	$\beta$	4,2 min	1,51 MeV
$^{82}\text{Pb}^{206}$	estável		

A última coluna desta tabela apresenta as energias com que as partículas são emitidas. Para o caso de emissão beta, tais energias correspondem à energia máxima do espectro.

A série do Tório tem como pai o nuclídeo  $^{232}\text{Th}$  que decai para o  $^{228}\text{Ra}$  dando início à cadeia. O nuclídeo final desta série é o  $^{208}\text{Pb}$  que é estável.

Apresenta-se a seguir uma tabela para os nuclídeos da série do Tório similar à tabela 1, apresentando também o tipo de partícula emitida e a energia da mesma, além da meia-vida de cada radionuclídeo.

**Tabela 2** – Nuclídeos da série do Tório (KAPLAN, 1963; FIRESTONE, 1999).

Elemento	Desintegração	Meia-vida	Energia/Partícula
$^{232}_{90}\text{Th}$	$\alpha$	$1,39 \times 10^{10}$ a	4,007 MeV
$^{228}_{88}\text{Ra}$	$\beta$	6,7 a	40 keV
$^{228}_{80}\text{Ac}$	$\beta$	6,13 h	2,18 MeV
$^{228}_{90}\text{Th}$	$\alpha$	1,91 a	5,423 MeV
$^{224}_{88}\text{Ra}$	$\alpha$	3,64 d	5,681 MeV
$^{220}_{85}\text{Em}$	$\alpha$	51,5 s	6,28 MeV
$^{216}_{84}\text{Po}$	$\alpha, \beta$	0,16 s	6,774 MeV
$^{212}_{82}\text{Pb}$	$\beta$	10,6 h	580 keV
$^{216}_{85}\text{At}$	$\alpha$	$3 \times 10^{-4}$ s	7,79 MeV
$^{212}_{83}\text{Bi}$	$\alpha, \beta$	60,5 min	$\alpha$ : 6,086 MeV $\beta$ : 2,25 MeV
$^{212}_{84}\text{Po}$	$\alpha$	$3 \times 10^{-7}$ s	8,78 MeV
$^{208}_{81}\text{Tl}$	$\beta$	3,1 min	1,79 MeV
$^{208}_{82}\text{Pb}$	estável		

Na série do Actínio, o núcleo pai é o  $^{235}\text{U}$  e o último nuclídeo da série é o  $^{207}\text{Pb}$  que é estável. Devido à sua baixa abundância na natureza, os radionuclídeos desta série são dificilmente detectados, pois em uma amostra natural de Urânio, apenas 0,7% dela será de  $^{235}\text{U}$ .

### 3.1.5 Desequilíbrio das Séries

Quando em uma série de decaimento, um dado radionuclídeo filho é retirado ou adicionado completa ou parcialmente da mesma, esta cadeia estará em desequilíbrio. Por outro lado, quando uma cadeia de decaimento se encontra em equilíbrio, a atividade de qualquer um dos filhos deve ser igual à atividade do núcleo pai da série.

Quando um radionuclídeo é parcialmente removido de uma série por qualquer razão que seja, a sua atividade e a dos que o seguem, será menor que a atividade do pai da série e dos filhos que dantes vieram. Se um filho for adicionado a uma amostra onde se encontra sua respectiva série, a atividade deste filho e dos demais membros da série que o seguem será maior que a atividade do pai e dos outros filhos da série. Assim, nas duas situações, a série se encontra em desequilíbrio. Depois de um período de tempo suficientemente maior que o tempo de meia-vida do núcleo filho que foi retirado ou adicionado à série, esta tende a voltar a situação de equilíbrio. Contudo, dependendo do radionuclídeo envolvido, isso pode levar até milhões de anos.

O desequilíbrio na série do Urânio e Tório pode ocorrer na natureza por várias razões. Muitos processos geológicos, como intemperismo e precipitação mineral, não representam sistemas fechados para trocas geoquímicas do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$  e seus filhos, podendo causar grandes desequilíbrios.

Além disso, processos químicos e físicos, como o recuo do núcleo após uma emissão alfa, difusão, dissolução química da matriz mineral por águas subterrâneas e processos da absorção, que continuamente agem em materiais geológicos, podem também ser a causa de desequilíbrios radioativos observados nas série do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ .

A série do  $^{238}\text{U}$  é especialmente susceptível a desenvolver desequilíbrios pois conta com vários radionuclídeos quimicamente distintos e com grandes meias-vida como o  $^{234}\text{U}$ , o  $^{230}\text{Th}$  e o  $^{226}\text{Ra}$ . Estudos tem mostrado que estes radionuclídeos podem acabar sendo

separados durante intemperismo, lixiviação e outros processos de alteração. Uma significativa fonte de desequilíbrio nessa série acontece quando o  $^{226}\text{Ra}$  decai para o  $^{222}\text{Rn}$ . O filho, radônio, é um gás nobre, não encontrado quimicamente nos materiais onde seus pais residem (TURNER, 1995). Por se estar na forma gasosa o  $^{222}\text{Rn}$  é altamente móvel e pode facilmente escapar para a atmosfera.

Na série do Tório, um possível desequilíbrio pode acontecer entre o  $^{232}\text{Th}$  e o  $^{228}\text{Ra}$ , pois o último possui uma meia-vida de aproximadamente seis anos. Contudo, se esse desequilíbrio acontecer e o sistema novamente se fechar quimicamente, o equilíbrio na série será restabelecido em aproximadamente 35 anos. Outro desequilíbrio possível em um sistema geoquímico aberto se dá entre o  $^{228}\text{Ra}$  e o  $^{228}\text{Th}$  que possui uma meia-vida de 2 anos. Porém, normalmente a constatação da existência de um equilíbrio entre o  $^{228}\text{Ra}$  e o  $^{228}\text{Th}$  fornece fortes indicações de que toda a série do Tório deve se encontrar em equilíbrio radioativo (Bastos, 2008).

Trabalhos como Sheppard (2008) e Chao (2007), têm mostrado fortes indícios de existir nas plantas um desequilíbrio na série do Tório entre o  $^{232}\text{Th}$  e o  $^{228}\text{Th}$ . Tal desequilíbrio seria devido ao efeito de recuo alfa ou do crescimento do  $^{228}\text{Ra}$  nas plantas, o que aumentaria a disponibilidade de  $^{228}\text{Th}$ .

### 3.1.6 Origem dos Radionuclídeos

As fontes de radionuclídeos encontrados na Terra são basicamente três, os radionuclídeos primordiais, que são os que se faziam presente na formação Terra, os cosmogênicos que são resultantes da interação da radiação cósmica com as partículas da atmosfera terrestre e os artificiais, que são radionuclídeos criados pelo próprio homem, como por exemplo o  $^{137}\text{Cs}$ .

Considerando o tempo de formação da Terra, estimada pelas respectivas teorias, apenas os radionuclídeos que possuem uma meia-vida maior que  $10^8$  anos, ou os produtos destes, ainda podem ser encontrados na superfície terrestre. Segundo teorias do surgimento do universo, os radionuclídeos primordiais encontrados na Terra e no universo como um todo, parecem ter surgido das reações termonucleares ocorridas nos interiores de estrelas durante a formação do universo.

Essas estrelas eram inicialmente compostas de hidrogênio e conseguiram realizar em seus núcleos, reação de fusão nuclear induzida pela altíssima temperatura que possuíam devido à contração gravitacional de suas massas. Assim, os núcleos estelares funcionavam como um grande reator nuclear, nos quais foram sintetizados a maioria dos núcleos que hoje conhecemos (TAUHATA et al., 2003).

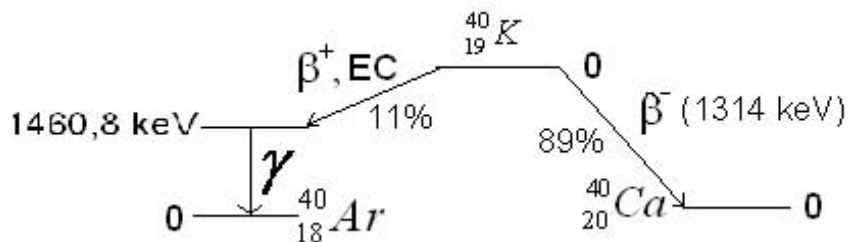
Apresenta-se na tabela a seguir uma lista mostrando os principais radionuclídeos primordiais, suas respectivas meias-vida, abundância isotópica, tipo de partícula emitida no processo de decaimento e a energia da mesma.

**Tabela 3** – Radionuclídeos primordiais e suas respectivas características, adaptado de Kathren, (1998).

Nuclídeo	Meia-vida (a)	Abundância Isotópica (%)	Modo de Decaimento	Energia (MeV)
<sup>40</sup> K	1,3 x 10 <sup>9</sup>	0,0118	Beta menos	1,32
<sup>50</sup> V	6 x 10 <sup>14</sup>	0,25	Beta menos	-
<sup>87</sup> Rb	4,7 x 10 <sup>10</sup>	27,83	Beta menos	0,273
<sup>113</sup> Cd	9 x 10 <sup>15</sup>	12,3	Beta menos	-
<sup>115</sup> In	9 x 10 <sup>14</sup>	95,7	Beta menos	0,49
<sup>123</sup> Te	1,2 x 10 <sup>13</sup>	0,87	CE	-
<sup>138</sup> La	1,1 x 10 <sup>11</sup>	0,09	Beta menos	0,27
<sup>142</sup> Ce	> 5 x 10 <sup>16</sup>	11,1	Alfa	1,5
<sup>144</sup> Nd	2,1 x 10 <sup>15</sup>	23,9	Alfa	1,83
<sup>147</sup> Sm	1,1 x 10 <sup>11</sup>	15,0	Alfa	2,23
<sup>148</sup> Sm	8 x 10 <sup>15</sup>	11,2	Alfa	1,95
<sup>149</sup> Sm	> 10 <sup>16</sup>	13,8	Alfa	< 2,0
<sup>152</sup> Gd	1,1 x 10 <sup>14</sup>	0,20	Alfa	2,14
<sup>156</sup> Dy	2 x 10 <sup>14</sup>	0,06	Alfa	3 (?)
<sup>176</sup> Lu	2,7 x 10 <sup>10</sup>	2,6	Beta menos	0,57; 0,31
<sup>174</sup> Hf	2 x 10 <sup>15</sup>	0,17	Alfa	2,50
<sup>180</sup> Ta	> 1,6 x 10 <sup>13</sup>	0,012	Beta menos	-
<sup>187</sup> Re	5 x 10 <sup>10</sup>	62,5	Beta menos	0,0026
<sup>190</sup> Pt	7 x 10 <sup>11</sup>	0,013	Alfa	3,16
<sup>204</sup> Pb	1,4 x 10 <sup>17</sup>	1,48	Alfa	2,6

Dentre os primordiais, podemos destacar os radionuclídeos <sup>235</sup>U com uma meia-vida de 4,47 x 10<sup>8</sup> anos e o <sup>40</sup>K que tem uma meia-vida de aproximadamente 1,26 bilhões de anos. O <sup>40</sup>K é um dos mais significativos por estar presente essencialmente em todas amostras ambientais.

Entre os isótopos naturais do Potássio, o <sup>40</sup>K é o único radioativo. Este possui uma abundância isotópica de 0,0118%, o equivalente à atividade específica de 31,4 Bq/g de Potássio natural. O <sup>40</sup>K pode decair para o <sup>40</sup>Ca por emissão beta menos, ou para o <sup>40</sup>Ar num estado excitado, por desintegração beta mais ou captura eletrônica (EC), conforme está representado no diagrama apresentado na figura 1 abaixo (KATHREN, 1998).



**Figura 1** – Diagrama de decaimento simplificado para o  $^{40}\text{K}$ , adaptado de Durrance (1986)

O fóton de 1460,8 keV, emitido na transição do  $^{40}\text{Ar}$  para seu estado fundamental, é usado para identificação e quantificação do  $^{40}\text{K}$  por espectrometria gama.

Os radionuclídeos cosmogênicos são criados continuamente, através da interação dos raios cósmicos de alta energia com os átomos da atmosfera. Esses radionuclídeos, em geral de baixo número atômico, apresentam produção maior na alta estratosfera, contudo, alguns prótons cósmicos energéticos podem chegar até a baixa atmosfera.

Os raios cósmicos são produzidos através de processos existentes em nosso Sol, em outras estrelas, ou por eventos como explosões de supernovas, pulsares ou núcleos de galáxias ativas. Juntamente com essas partículas também se encontram fótons de alta energia de origem extraterrestre que incidem sobre a Terra. Assim os níveis de radiação cósmica que atingem a Terra são variáveis e dependem de fatores extraterrestres, como por exemplo o ciclo de atividade solar.

Como consequência, a taxa de produção de radionuclídeos cosmogênicos é variável, e além de depender dos fatores anteriormente citados, depende da altitude de onde ocorre a interação, pois a taxa de variação deve também mudar com o número de partículas presentes na atmosfera.

A produção dos radionuclídeos cosmogênicos fornece os seguintes radionuclídeos:  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{22}\text{Na}$  e  $^{85}\text{Kr}$ . Quase todos os organismos vivos têm grandes quantidades de carbono e hidrogênio; e um pequeno percentual destes elementos é radioativo (TAUHATA et al., 2003).

Apresenta-se a seguir uma tabela contendo os principais radionuclídeos cosmogênicos encontrados em nosso planeta, bem como suas respectivas meias-vida, taxas de produção, inventário global e suas concentrações no ar.

**Tabela 4** – Principais radionuclídeos cosmogênicos e suas respectivas características, adaptado de Kathren, (1998).

Isótopo	Meia-vida (a- anos, d- dias)	Taxa de Produção (átomo/cm <sup>2</sup> s)	Inventário Global (kg)	Concentração no ar (Bq/m <sup>3</sup> )
<sup>3</sup> H	12,26 a	0,25	3,5	0,167
<sup>7</sup> Be	53 d	0,08	0,0032	0,0017
<sup>10</sup> Be	2,5 x 10 <sup>6</sup> a	0,05	3,9 x 10 <sup>5</sup>	10 <sup>-7</sup>
<sup>14</sup> C	5760 a	2,5	6,8 x 10 <sup>4</sup>	0,067
<sup>22</sup> Na	2,6 a	8,6 x 10 <sup>-5</sup>	0,0019	1,7 x 10 <sup>-6</sup>
<sup>26</sup> Al	7,4 x 10 <sup>5</sup> a	1,4 x 10 <sup>-5</sup>	1000	-
<sup>32</sup> Si	280 a	1,6 x 10 <sup>-4</sup>	1,4	3,3 x 10 <sup>-8</sup>
<sup>32</sup> P	14,3 d	8,1 x 10 <sup>-4</sup>	0,0004	0,00033
<sup>33</sup> P	24,4 d	6,8 x 10 <sup>-4</sup>	0,0006	0,00025
<sup>35</sup> S	87,9 d	0,0014	0,0045	0,00025
<sup>36</sup> Cl	3,8 x 10 <sup>5</sup> a	0,0011	1,4 x 10 <sup>4</sup>	5 x 10 <sup>-10</sup>
<sup>39</sup> Ar	270 a	0,0056	23	-
<sup>81</sup> Kr	2,1 x 10 <sup>5</sup> a	10 <sup>-6</sup>	16,2	-

### 3.1.7 Interação da Radiação com a Matéria

Quando a radiação se propaga na matéria, vários efeitos e eventos podem ocorrer. O conhecimento e entendimento destes processos é de fundamental importância para a física nuclear experimental, pois neles estão as bases dos dispositivos de detecção e deles dependem características importantes de um sistema de medida, como por exemplo a sensibilidade e eficiência do detector, que são grandezas definidas e discutidas no capítulo 4.

A radiação corpuscular tem várias formas de interagir com a matéria. As partículas que possuem cargas normalmente tem uma alta taxa de perda de energia na matéria. Contudo, como nesse trabalho, estaremos usando espectrometria de raios gama, portanto, estudaremos os processos de interação da radiação gama com a matéria. Diferentemente, os fótons por não possuírem carga, não podem sofrer múltiplas colisões como as partículas; eles são mais penetrantes por terem uma menor seção de choque, que é a medida da probabilidade de que alguma interação aconteça.

Primeiramente podemos destacar o efeito de absorção sofrido por um feixe de fótons ao passar por um dado material de uma certa espessura. Neste caso, a intensidade inicial do feixe sofrerá uma redução exponencial proporcional ao coeficiente de atenuação do material atravessado. A medida da redução na intensidade do feixe é dado pela lei de Bio-Lambert:

$$I = I_0 e^{-\mu x} \quad (9)$$

Apesar de ser conhecido um grande número de mecanismos de interação de raios gama com a matéria, somente três tem um papel importante na faixa de energia da radiação considerada neste trabalho: produção de pares, espalhamento Compton e efeito fotoelétrico.

#### 3.1.7.1 Produção de pares

A produção de pares consiste na transformação de um fóton em um par elétron-pósitron. Para que se conserve o momento angular, este procedimento ocorre apenas na presença de um terceiro corpo, geralmente um núcleo, e ainda o pósitron e o elétron são emitidos na mesma direção e em sentidos opostos. Devido à aniquilação do pósitron, dois fótons são normalmente produzidos como produtos secundários desta interação (KNOLL, 2000).

Este processo é predominante para raios gama com alta energia, pois para que ele seja energeticamente possível no campo do núcleo, a energia do raio gama precisa ser maior que duas vezes a massa de repouso do elétron de 1,022 MeV. É possível que a produção de pares ocorra no campo de um elétron atômico, mas para isso a energia mínima do fóton deve ser de quatro massas de repouso do elétron que é 2,044 MeV e a probabilidade de que isso aconteça é muito menor.

### 3.1.7.2 Espalhamento compton

Este efeito é predominante para energias que não são nem tão próximas à energia de ligação do elétron e nem muito superiores a 1 MeV. Então, para o fóton incidente os elétrons do material podem ser considerados como livres, já que a energia do fóton é bem maior que a energia de ligação. Neste espalhamento, o raio gama incidente interage com um elétron no material absorvedor, e é defletido através de um ângulo  $\theta$  com respeito a sua direção original, com uma energia menor que a incidente.

O fóton transfere uma parte de sua energia para o elétron e este então, recua. Essa energia transferida é igual à diferença entre a energia inicial e a final do fóton. Como todos os ângulos são possíveis, a energia transferida para o elétron pode variar de 0 até grandes frações da energia do gama incidente.

A relação entre a energia transferida e o ângulo de espalhamento do fóton ( $\theta$ ) para uma interação é dada por:

$$h\nu' = \frac{h\nu}{1 + \left(\frac{h\nu}{m_0c^2}\right)(1 - \cos\theta)} \quad (10)$$

Onde  $m_0c^2$  é a energia de repouso do elétron (0,511 MeV),  $h\nu'$  a energia do fóton espalhado e  $h\nu$  a energia do fóton incidente. A equação 10 pode ser derivada das equações de conservação de momento e energia.

Como foi visto, a energia transferida para o elétron depende do ângulo de espalhamento do fóton. Assim, a energia máxima que pode ser transferida neste efeito conhecida como *Compton edge* acontece quando o ângulo de espalhamento é igual a  $180^\circ$ , que é uma colisão frontal.

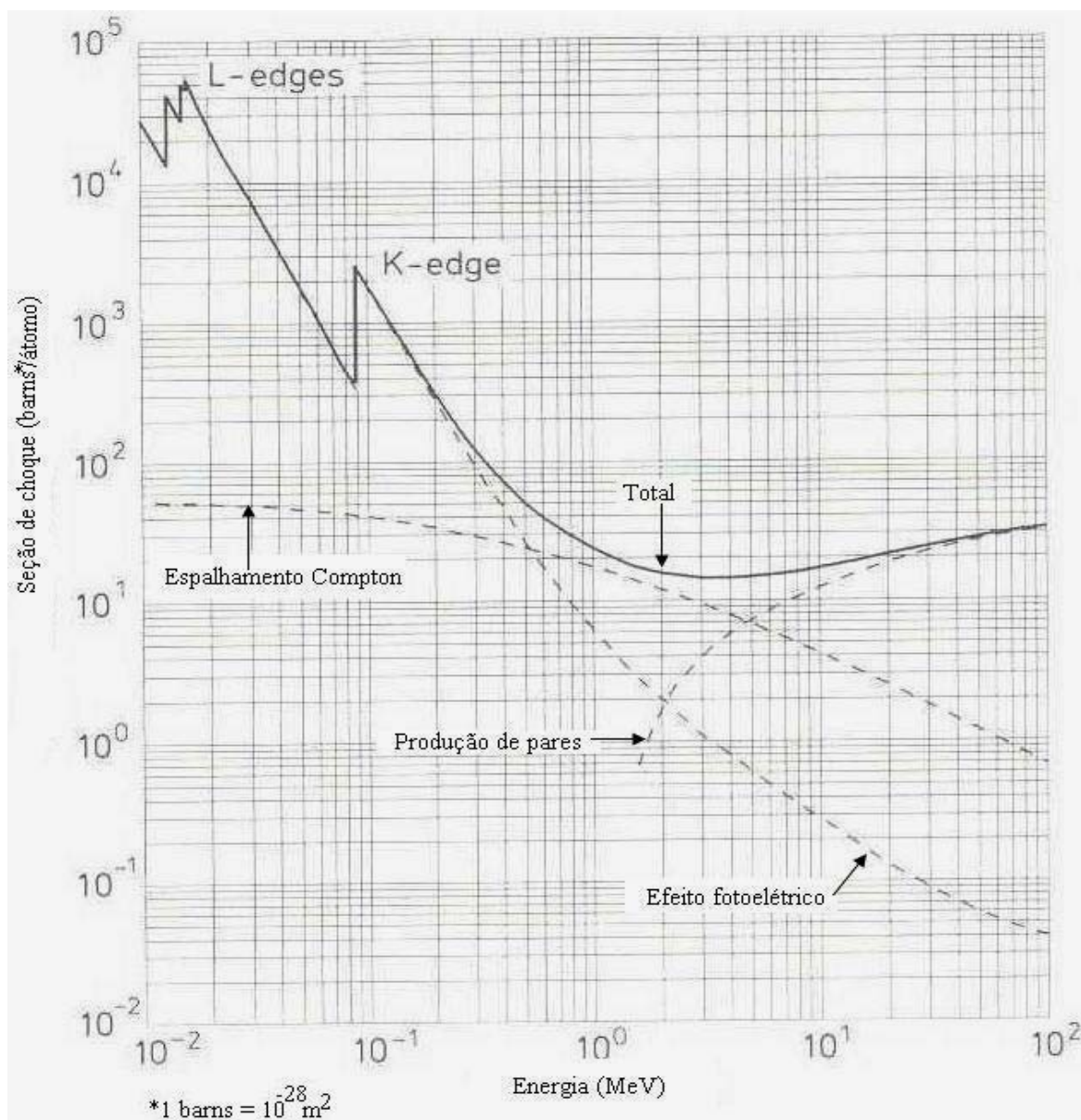
### 3.1.7.3 Efeito fotoelétrico

O efeito fotoelétrico acontece quando um fóton de frequência suficientemente alta incide sobre um material e é absorvido por um elétron ligado. Este efeito só ocorre com os elétrons ligados dos átomos (geralmente da camada k). Após o elétron absorver totalmente o fóton, este é ejetado. A energia com que este elétron é ejetado, é dada por:

$$E = hv - \Phi \quad (11)$$

Onde  $hv$  é a energia do fóton incidente e  $\Phi$  é a energia de ligação do elétron ao núcleo. Este efeito acontece predominantemente com fótons que possuem energia na faixa equivalente à energia de ligação do elétron.

Apresenta-se a seguir uma figura mostrando a variação da seção de choque para o efeito fotoelétrico, Compton e produção de pares em função da energia do fóton incidente no chumbo



**Figura 2** – Seção de choque para a absorção total de fótons para o chumbo, adaptado de Leo (1994)

### 3.2 RADIOATIVIDADE EM AMOSTRAS ALIMENTARES ANIMAL

#### 3.2.1 Radioatividade em Amostras de Ração Animal

As rações que utilizamos neste trabalho são quase todas feitas à base de milho e de farelo de soja. Assim, nestas rações estão incorporadas a radioatividade natural

presentes no milho e na soja. Estas são ainda compostas com um complexo vitamínico denominado Premix Mineral Vitamínico.

As plantas podem incorporar radionuclídeos presentes no solo, ou ainda, podem absorver radionuclídeos presentes na atmosfera terrestre através do acúmulo de deposição destes sobre a superfície da planta. Amostras de soja e milho contam ainda com a atividade referente ao  $^{40}\text{K}$  que se faz presente na composição da própria planta.

Além disso, as rações também devem então estar susceptíveis aos possíveis desequilíbrios das séries do Urânio e do Tório encontrados nas plantas, como mencionado no item 3.1.5.

A utilização de fontes de Fósforo, como por exemplo os fosfatos naturais, pode embutir nas rações uma certa quantidade de Chumbo, já que esse elemento está incorporado nestas fontes. A presença em excesso desse metal pesado pode causar várias alterações biológicas nos animais, como por exemplo a infertilidade.

Os tipos de ração para gado de leite e para gado de corte, são ainda aditivadas com o suplemento alimentar fosfato bicálcico, que tem um teor de radioatividade considerável, como se descreverá a seguir.

### 3.2.2 Radioatividade em Amostras de Fosfato Bicálcico (DCP)

A radioatividade em rochas e solos é devida, em grande parte, a radionuclídeos que se faziam presente na formação dos mesmos. Rochas e solos podem ainda sofrer acúmulo de material radioativo oriundo do decaimento de radionuclídeos que se encontram na atmosfera e podem sofrer trânsito ou deposição na superfície terrestre.

O fosfato extraído das rochas, freqüentemente utilizado como fertilizante ou adubo, contém concentrações significativas de Urânio. O Urânio é encontrado na maioria das rochas da crosta terrestre com atividades que variam em torno de 33 Bq/kg; um valor pequeno se comparado à concentração de Urânio que pode ser encontrada nas rochas fosfáticas, entre 1500 a 1700 Bq/kg, as quais são a principal matéria prima do fosfato bicálcico (KATHREN, 1998; CASACUBERTA, 2007). Assim, a utilização destas rochas como matéria prima para a produção do DCP, implicará em uma adição de uma quantidade de elementos radioativos significativa.

A quantidade de atividade acrescida ao fosfato bicálcico depende também dos processos utilizados para a obtenção do mesmo a partir das rochas fosfáticas.

Um dos processos para a obtenção do DCP é a digestão da rocha fosfática. Um dos principais componentes desta rocha é a fluapatita, que é insolúvel no seu estado original e não pode ser aproveitado como fonte de Fósforo. Por isso a rocha passa por um processo de digestão normalmente usando o ácido sulfúrico. Depois que a rocha moída é misturada ao ácido sulfúrico, o DCP precipita desta solução sendo ao final separado por um processo de filtração. Nesse procedimento, enquanto a rocha moída está sendo digerida no ácido sulfúrico, o Rádio co-precipita com o  $\text{CaSO}_4$ , enquanto o Urânio e o Tório são carregados com o Fósforo para o ácido fosfórico, que dará origem ao DCP.

Outro processo para a produção de DCP é a utilização de minérios fosfáticos sedimentares. Neste, as rochas são diluídas diretamente no ácido fosfórico (CASACUBERTA, 2007), e segundo Arruda-Neto (1996), este processo de produção deixa o DCP com a maioria do Urânio e com cerca de 70% dos seus filhos.

## 4 MATERIAIS E MÉTODOS

### 4.1 ESPECTROMETRIA GAMA

A espectrometria de raios gama é bastante usada na física nuclear, pois trata-se de uma técnica não-destrutiva, e em geral mostra-se um método simples e rápido de identificação e quantificação de radionuclídeos naturais e artificiais emissores de radiação gama, além de possuir um caráter multi-elementar e de não necessitar a realização de processos de separação química dos elementos, possibilitando que se realize medidas de amostras *in natura*. Na seqüência, será descrito de forma detalhada, todo o sistema de espectrometria gama utilizado na realização do presente trabalho.

#### 4.1.1 Detector

No presente trabalho, utilizou-se de um detector de Germânio hiper-puro (HPGe). Segundo Knoll (2000), por produzirem mais carregadores, par elétron-buraco, para uma dada radiação comparado-se com os outros tipos de detectores, o uso de material semicondutores para a detecção de radiação ionizante, se faz mais apropriado. Dentre estes, destacam-se o uso do semicondutor Germânio (Ge). Os detectores de Germânio são os mais usados para a detecção de raios gama, pois o Germânio possui um numero atômico alto ( $Z_{\text{Ge}} = 32$ ) o que faz que ele possua uma seção de choque para o efeito fotoelétrico maior se comparada com outros elementos usados. Esses detectores são capazes de medir raios gama com energias desde poucos keV até cerca de 10 MeV e ainda possuem alta resolução, verificando-se então que tais detectores são altamente recomendados para o uso em espectrometria de raios gama.

O modelo do detector HPGe usado é GEM-M 7080-P-S, ORTEC. Este possui um cristal coaxial tipo-p, que é revestido por uma camada de 1 mm de alumínio, situada a uma distancia de 4 cm do mesmo. O comprimento do cristal é de 84,2 mm e o diâmetro de 69,9 mm.

#### 4.1.1.1 Calibração em energia

Para que seja possível certificar-se que a energia atribuída a um pico é realmente referente ao radionuclídeo da energia em questão, é necessário que se faça uma calibração em energia do sistema, uma vez que os sistemas de medidas por espectrometria podem eventualmente apresentar não-linearidades.

A calibração em energia é realizada através da medida de espectros de fontes certificadas, das quais se conhecem os raios gama que por elas são emitidos, fazendo-se a associação destas energias com o seu respectivo canal no MCA (multicanal) por inspeção manual ou via análise computacional. Normalmente essa calibração é realizada com três ou mais linhas gama conhecidas, de energias distribuídas dentro da faixa de energia de interesse. Após a calibração em energia do sistema, é possível associar ao canal da centróide de um pico a sua energia correspondente e através de tabelas de radionuclídeos, determinar a qual radionuclídeo pertence tal raio gama.

Na calibração realizada para o presente trabalho, usou-se as fontes certificadas tipo pastilha de  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{60}\text{Co}$  (linhas 1,17 e 1,33 MeV) e dez linhas do  $^{152}\text{Eu}$ , sendo estas no intervalo entre 121 e 1408 keV.

#### 4.1.1.2 Eficiência de detecção

A eficiência de detecção pode ser definida, de uma forma geral, como a capacidade do detector de gerar um pulso para cada quantum da radiação incidente que interage com ele. Para detectores de radiação eletromagnética e partículas sem carga (radiação secundária), a eficiência de detecção pode ser dividida em três tipos: eficiência absoluta, eficiência intrínseca e relativa.

A eficiência absoluta do fotopico é conhecida como a razão entre o número de pulsos registrados no detector para um fotopico pelo número de quanta de radiação emitido pela fonte. Este conceito inclui características do sistema de medida, como a geometria da fonte e do detector, sendo ainda a eficiência absoluta uma função da energia, e também varia em função da energia.

A eficiência intrínseca é a razão entre o número de pulsos registrados no detector pelo número de quanta de radiação incidente no detector, é a quantidade de raios gama que são registrados pelo detector, dentre os gamas que chegam até ele.

O tempo morto de um detector pode ser definido, de maneira simplificada, como o tempo que o mesmo leva, a partir da chegada de um fóton, para emitir o sinal de carga correspondente, sendo que, nesse intervalo o detector estará impedido, e não conseguirá medir um outro fóton que chegue até ele.

A eficiência relativa para detectores coaxiais de germânio é definida pela razão da eficiência absoluta do detector pela eficiência absoluta de um detector de cintilação de NaI(Tl) de 3” de comprimento e 3” de diâmetro com a medida sendo feita a 25 cm de distância da fonte, para a linha de 1,33 MeV do  $^{60}\text{Co}$ , já que a eficiência absoluta é função da energia, como definido em “Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Rays Detectors” (I.E.E.E., 325).

Dessa forma esta eficiência é dada em porcentagem. A eficiência relativa do detector de HPGe que utilizado no presente trabalho é de 66%.

#### 4.1.1.3 Blindagem do sistema de detecção

O fundo de radiação natural é conhecido como a quantidade de radiação a que nós e o meio que nos cerca estamos expostos devido ao contínuo bombardeio de radiação que atinge a superfície terrestre, proveniente dos raios cósmicos e raios gama de fontes naturais e artificiais, como por exemplo o Potássio natural presente no concreto e em outros materiais de construção e ajudam a compor a radiação de fundo já que estes materiais estão presente em todas as construções e prédios.

Assim o sistema de detecção, por estar imerso nesse meio, também está sujeito a essa radiação de fundo. Por isso a blindagem é parte fundamental do sistema de detecção, porque sem ela, o limite mínimo de detecção, que depende das características do fundo medido pelo sistema (CURRIE, 1968), seria muito alto, inviabilizando a medida de atividades baixas.

A blindagem do sistema de detecção é feita com “paredes” que são colocadas de forma que envolvem o detector, conhecido como castelo, constituídas de

materiais especialmente escolhidos para que possam atenuar ao máximo a radiação de fundo, e para que a contaminação dos espectros com esse tipo de radiação seja mínima. Para isso, as paredes da blindagem são compostas de vários materiais sobrepostos para blindar mais eficientemente os vários tipos de radiação.

Devido à sua alta densidade e seu alto número atômico, o chumbo é o material mais usado no castelo de blindagem de radiação. Porém, devido à possibilidade de radiação secundária oriunda de traços de isótopos radioativos encontrados no chumbo e do raio-X emitido devido à interação da radiação de fundo com o próprio chumbo, outros materiais, de menor densidade e número atômico, são colocados justapostos internamente à parede de chumbo a fim de blindar essa radiação secundária. Então forma-se no castelo uma ordem decrescente de densidade ou número atômico entre os materiais que compõem as paredes da blindagem.

A blindagem do detector HPGe utilizado neste trabalho, foi da ORTEC, modelo HPLBS1. Esta blindagem é composta por 101 mm de chumbo recoberto internamente por 0,5 mm de estanho e 1,6 mm de cobre para diminuir a incidência no detector dos raios-X gerados no chumbo. A blindagem é recoberta externamente por 9,5 mm de aço com baixa porcentagem de carbono. Toda a superfície externa é finalizada com poliuretano e as superfícies internas (chumbo e cobre) são polidas e revestidas com 0,5 mm de verniz de acrílico. A blindagem possui uma cavidade com diâmetro interno de 27,9 cm por 40,6 cm de profundidade onde se encontra o detector propriamente dito, e onde é colocada a amostra a ser medida.

#### 4.1.1.4 Resolução em energia

A resolução em energia é uma medida da capacidade do detector em distinguir duas linhas de energias muito próximas no espectro. Em geral ela é medida enviando um feixe de radiação monoenergética para o detector e observando o espectro resultante (LEO, 1994). A resolução em energia de um detector é geralmente dada como a largura à meia altura do pico, FWHM (“full width at half maximum”).

A resolução em energia, apresentada por um detector de germânio é determinada normalmente pela combinação de três fatores: distribuição estatística do número de carregadores de carga, variação na eficiência na coleção de carga e contribuição do ruído

eletrônico. O domínio de qualquer um desses fatores dependerá da energia da radiação, do tamanho e da qualidade inerente do detector em uso. A largura máxima à meia altura (FWHM) de um pico típico no espectro, devido à detecção de um raio gama monoenergético, pode ser escrita como (KNOLL, 2000):

$$FWHM^2 = FWHM_D^2 + FWHM_X^2 + FWHM_E^2 \quad (12)$$

Onde o primeiro fator da equação 12,  $FWHM_D^2$ , é a contribuição devido a efeitos de flutuação estatística, e é representado pela equação seguinte.

$$FWHM_D^2 = 2,35 \sqrt{\frac{Fw}{E}} \quad (13)$$

Onde,  $w$  é a energia necessária para produzir um par elétron-buraco no detector,  $E$  é a energia de interesse e  $F$  é o fator de Fano (LEO, 1994).

A contribuição do segundo termo,  $FWHM_X^2$ , é devida à coleta incompleta de cargas, sendo mais significativa em detectores com grande volume ativo e campo elétrico pequeno.

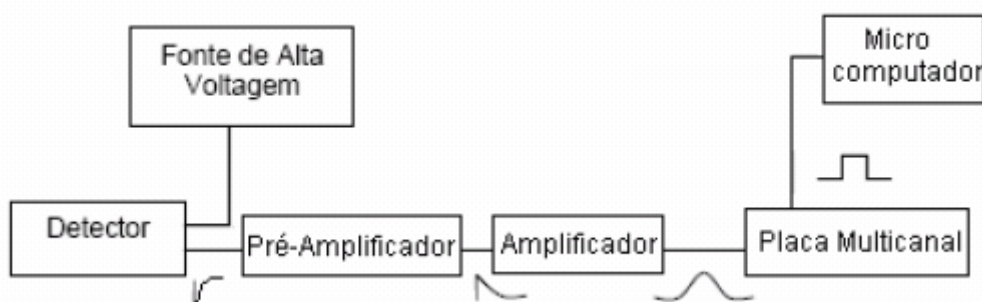
A contribuição do terceiro fator, referente ao ruído eletrônico, é a representação da soma dos efeitos de borda que ocorrem em todos os dispositivos eletrônicos que compõem o sistema de detecção como um todo. Este termo para os detectores de germânio hiper-puro é menor que 1% para energias abaixo de 50 keV, e ainda diminui à medida que a energia aumenta. Assim, neste trabalho pudemos desprezar este terceiro fator (ZULLIGER, 1969).

A resolução em energia medida para o HPGe para as linhas 1,17 MeV e 1,33 MeV do  $^{60}\text{Co}$  foram 1,95 e 2,03 keV, respectivamente, e resolução de 1,51 keV para o  $^{137}\text{Cs}$ .

#### 4.1.2 Eletrônica Nuclear

Para que um raio gama emitido por uma amostra possa ao final ser contado pelo software que faz a aquisição de dados e gerar os espectros, existe uma seqüência de equipamentos eletrônicos, desde o detector até o computador, com o intuito de fazer como que a radiação emitida possa chegar ao computador de uma forma que ele possa ler e registrar o mesmo.

Os detectores de radiação transformam os sinais originais, gerados da interação da radiação com a matéria no detector, em sinais elétricos, que são depois processados por essa cadeia de módulos eletrônicos. A figura 3 mostra uma representação desta eletrônica apresentando os equipamentos usados.



**Figura 3** – Configuração dos componentes eletrônicos que compõem o sistema de detecção.

Apresenta-se a seguir uma descrição de cada um destes elementos utilizados na eletrônica nuclear:

A **fonte de alta tensão** utilizada no presente trabalho é modelo ORTEC 659, sendo sua função alimentar o detector. Esta é uma fonte de alta tensão variável com um alcance de 0 até 5000 V. Durante a realização das medidas, o detector foi alimentado por uma tensão de 3000 V.

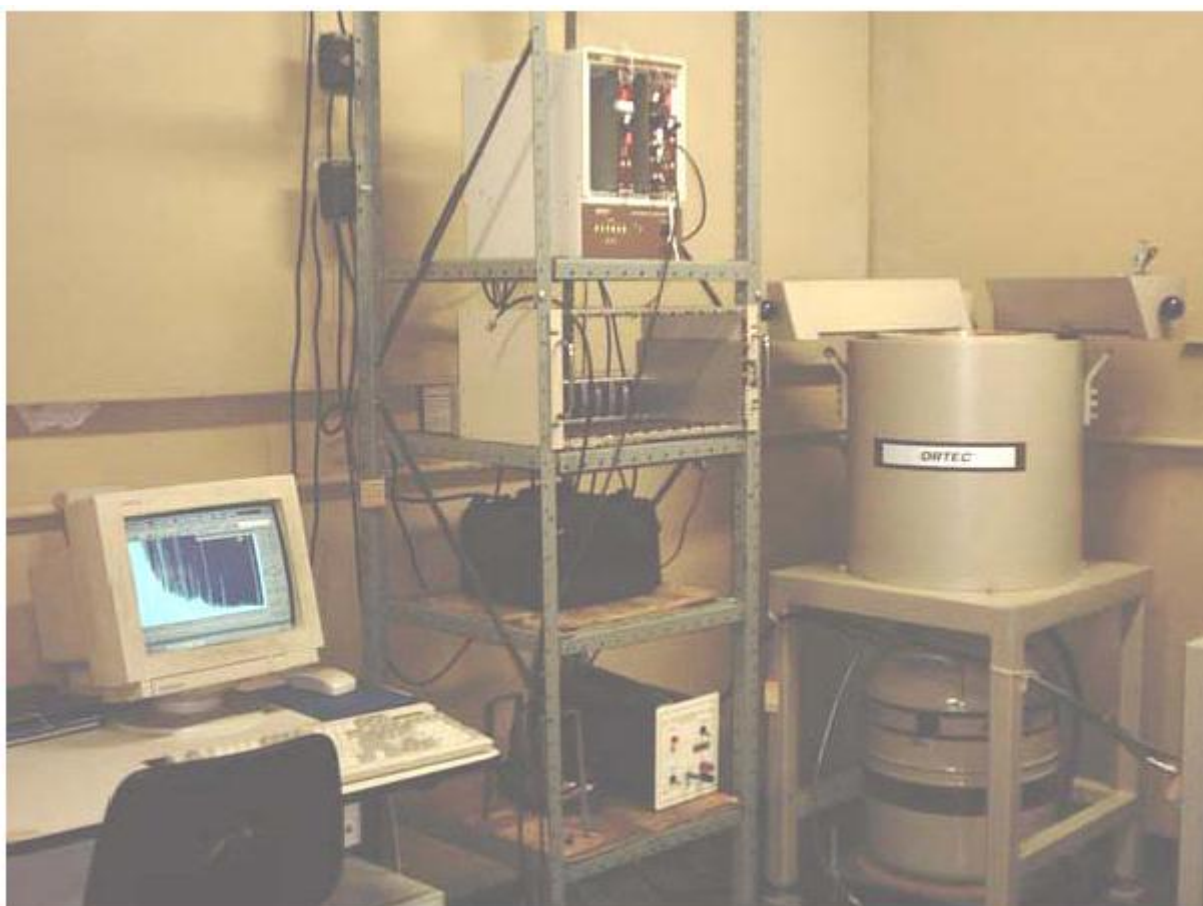
O **Pré-amplificador** utilizado foi do tipo sensível à carga, que gera um sinal analógico. Sua função básica é amplificar os sinais fracos vindos do detector e enviá-los ao amplificador. Uma característica importante do pré-amplificador é que ele deve adicionar o mínimo possível de ruído ao sinal. Para isso, ele é acoplado ao detector, para não utilizar cabos e evitar os ruídos gerados nos mesmos.

**O Amplificador** linear que compõe a eletrônica usada no presente trabalho é o modelo 575 da ORTEC. Suas principais funções são: amplificar o sinal vindo do pré-amplificador e formata-lo de forma conveniente e compatível com os futuros processamentos que o pulso irá ser submetido. Um fator importante a ser considerado na escolha do amplificador é o tempo de formação do pulso, que deve ser selecionado para otimizar a performance total quando altas taxas de contagens precisam ser medidas. Para detectores coaxiais de Ge, a constante de tempo para otimizar a resolução está entre 2 – 4  $\mu\text{s}$ . Entretanto, se as taxas de contagens são maiores que  $200 \text{ s}^{-1}$ , constantes de tempo de 2  $\mu\text{s}$  ou maiores contribuem para a produção de *pile up* e para as incertezas no cálculo das áreas dos picos, devido a distorções na sua forma. O tempo de formação do pico do amplificador utilizado foi de 0,5  $\mu\text{s}$ . O referido amplificador, possui dois estágios de ajuste de ganho, um grosso e um fino, que juntos fornecem uma faixa de ganho de 5 a 750 vezes. Pode-se ainda escolher a polaridade do pulso de entrada vindo do pré-amplificador, para positiva ou negativa, e também selecionar a forma de saída do pulso para unipolar ou bipolar. O amplificador foi ajustado com um fator de ganho fino de 1,394 e um fator de ganho grosso de 20, com o circuito de entrada analisando pulsos de entrada positivos e resultando em pulsos de saída unipolares.

A **Placa multicanal**, modelo EG&G ORTEC Trump-8K/2K (multichannel buffer – MCB), é a utilizada no sistema de detecção no qual realizaram-se as medidas. Estas placas são dispositivos que selecionam os pulsos que chegam de acordo com a sua altura, já que a altura dos pulsos vindos do amplificador é proporcional a sua energia. A placa registra cada altura em um canal, e conta o número de pulsos que chegam com a mesma altura e os envia para o canal respectivo. A partir disso forma-se o espectro de uma medida, que é a representação gráfica do número de pulsos de mesma altura, ou energia, que se observa. Estes dispositivos são utilizados acoplados a um computador com um software para gerenciamento de seu funcionamento, que no caso foi o software Maestro-32 para Windows, que é o programa usado para a aquisição de dados e que fornece o espectro das amostras que medidas. No sistema de aquisição de dados do presente trabalho, a placa multicanal estava ajustada para operar com 8192 canais.

### 4.1.3 Configuração do Sistema de Detecção

Na figura 4 pode ser visto todo o sistema de aquisição de dados, incluindo a blindagem, o detector, e a eletrônica nuclear utilizada.

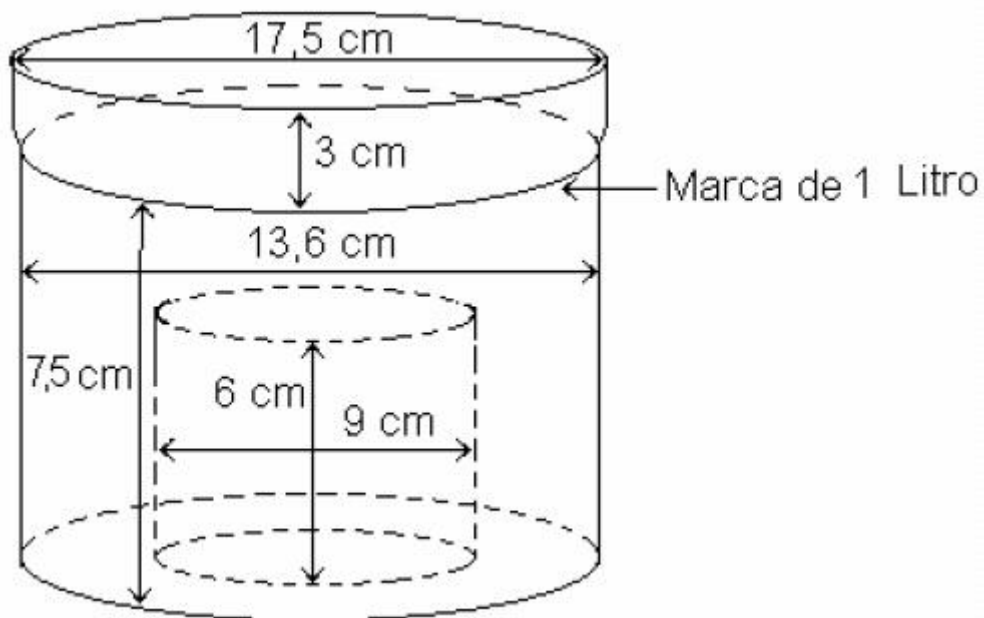


**Figura 4** – Foto do sistema de aquisição de dados.

### 4.1.4 Geometria Utilizada

A geometria do porta amostra usado no presente trabalho foi do tipo béquer Marinelli de 1 L, que são frascos cilíndricos dotados de uma reentrância também cilíndrica em seu fundo. Este tipo de geometria acomoda maior volume de amostra próximo ao detector, permitindo posicionar a amostra ao redor do mesmo, e não somente sobre ele, aumentando

desta forma a eficiência de detecção. Suas características e dimensões aproximadas são apresentadas na figura 5.



**Figura 5** – Representação esquemática de um béquer Marinelli de 1 L

## 4.2 AMOSTRAGEM

### 4.2.1 Descrição das Amostras

As amostras utilizadas nesse trabalho eram compostas por quatro tipos diferentes de ração e uma amostra de fosfato bicálcico, usado para suplemento alimentar animal. Os quatro tipos de rações animal analisadas foram: para gado de corte, para gado de leite, para frango no início da vida e para frango adulto.

#### 4.2.2 Origem e Importância das Amostras

Todos os tipos de rações eram de uma mesma marca, cuja produção e comercialização se davam na cidade de Londrina, Paraná. Já o fosfato bicálcico não era da mesma marca das rações, contudo o mesmo também era comercializado em Londrina.

As amostras de ração e fosfato foram adquiridas no início da segunda quinzena do mês de dezembro do ano de 2007, e a preparação das mesmas se deu nos dias subseqüentes ao da compra.

Os quatros tipos de ração foram comprados em pacotes de 40 kg cada um e o fosfato foi comprado em um pacote de 50 kg, pois eram as menores quantidades comercializadas.

#### 4.2.3 Preparação das Amostras

A partir das quantidades totais das amostras, decidiu-se preparar, para cada tipo de ração e o para o fosfato, seis amostras de cada um deles, para que se pudesse ter uma boa estatística com os resultados, considerando a prática observada na literatura.

Conforme já mencionado, usou-se a geometria Marinelli de um litro, e como a densidade das rações e do fosfato eram próximas de  $1 \text{ g/cm}^3$ , usar-se-ia aproximadamente apenas 6 kg de cada pacote de ração e do pacote de fosfato. Como essa quantidade era muito menor que o volume total de cada pacote, foi preciso que se tomasse um cuidado especial para que se pudesse fazer com que o conteúdo de cada béquer Marinelli fosse o mais homogêneo possível.

Para isso, antes de começar a encher os Béqueres, despejou-se a maior quantidade que se conseguiu dos sacos com as amostras em uma grande bacia de plástico disponível no laboratório. O ato de despejar as amostras na bacia também não se deu de forma aleatória. Ao passar as amostras dos sacos para a bacia, inclinava-se o saco, tentando buscar com as mãos amostras de várias regiões internas do saco, principalmente do fundo, para evitar

que caíssem na bacia amostras apenas da parte de cima. Após as amostras serem despejadas nas bacias, elas foram misturadas repetidamente com cuidado buscando uma homogeneidade.

Conseguiu-se despejar nas bacias aproximadamente entre 15 e 20 kg das amostras contidas no saco. A partir desta quantidade, encheu-se os béqueres com as amostras. Durante todo o processo de manuseio das amostras, as pessoas envolvidas portavam máscaras de proteção e luvas descartáveis.

Para transferir as amostras da bacia para os béqueres utilizou-se o auxílio de copos plástico descartável, que em princípio é um objeto que não produziria contaminação radiológica nas amostras.

Ao despejar as amostras nos béqueres, o material foi levemente compactado, de maneira que as amostras se distribuíssem uniformemente no interior do porta-amostra. Após os béqueres serem preenchidos com as amostras até a marca de um litro, eles foram tampados e ainda selados com uma fita adesiva larga para assegurar uma melhor vedação no intuito de evitar a fuga de algum radionuclídeo em forma de gás, como por exemplo o  $^{228}\text{Rn}$ , o que geraria um desequilíbrio na série de decaimento radioativo.

Após serem selados, os béqueres foram pesados e, como cada um deles já havia sido pesado antes do início do processo de enchimento, pode-se obter assim a massa líquida de cada uma das amostras.

Findo o processo de preenchimento dos béqueres, as amostras foram guardadas por pelo menos quarenta dias antes de serem medidas, para que se atingisse o equilíbrio secular entre o  $^{226}\text{Ra}$  e o  $^{222}\text{Rn}$ . Segundo Bacchi (1996) a equação para o cálculo do tempo necessário para se obter o equilíbrio secular é:

$$t = 8t_{\frac{1}{2}} \text{ (do núcleo filho)} \quad (14)$$

Como a meia-vida do  $^{222}\text{Rn}$  é 3,8 dias, a equação acima resulta em 30,4 dias, portanto o tempo de repouso estabelecido foi adequado.

### 4.3 ANÁLISE

Neste item serão discutidas as principais grandezas calculadas e equações utilizadas para as análises no decorrer do trabalho, como o cálculo da atividade, limites mínimos de detecção e as variáveis associadas a esses cálculos, bem como todo o procedimento detalhado da análise experimental dos dados.

#### 4.3.1 Expressão para o Cálculo da Atividade

Para determinar a atividade de um dado radionuclídeo referente a uma dada amostra, precisa-se levar em conta vários fatores, como a massa da amostra, a eficiência do detector usado para aquela energia e ainda outras grandezas obtidas do espectro da mesma. A atividade é dada numericamente pela equação a seguir (IAEA,1989):

$$A = \frac{N_L}{\varepsilon.P_\gamma.m.t} \quad (15)$$

Onde, A é a atividade do isótopo em questão, que é a grandeza que pretendemos obter.  $N_L$  é o número de contagens líquidas obtido no fotopico do radionuclídeo de interesse.  $P_\gamma$  é a probabilidade do respectivo isótopo decair emitindo um raio gama. A letra  $\varepsilon$  representa a eficiência absoluta de detecção para a energia de interesse, já que, como discutido anteriormente, a eficiência de detecção é função da energia.

Além de depender da energia dos fótons, a eficiência absoluta depende também da quantidade de radiação que incide sobre o detector, já que o mesmo possui um tempo morto. A quantidade de radiação incidente, além de, claro, depender da atividade da amostra medida, dependerá também das dimensões e da densidade das amostras. Por isso tomou-se o devido cuidado em utilizar-se sempre da mesma geometria, com o volume de amostra constante de um litro.

Como visto no item em que se discutiram os princípios da radioatividade (3.1), os radionuclídeos seguem uma certa seqüência de decaimento, nas chamadas de séries

ou cadeias de decaimento. Partindo do pressuposto que a série de decaimento encontra-se em equilíbrio, pode-se determinar a atividade do núcleo pai a partir da atividade de seus filhos. Portanto, as atividades calculadas dos radionuclídeos medidos por espectrometria gama devem referir-se ao pai da série.

Quando uma dada série de decaimento possui um desequilíbrio, que ocorre em certos setores da série envolvendo o isótopo medido, as atividades devem referir-se então à sub-série (SANTOS et al., 2000).

As atividades estimadas finais para as séries foram calculadas pela média ponderada das atividades de um cada dos filhos da série ou sub-série, segundo a equação mostrada abaixo.

$$\bar{A} = \frac{\left( \frac{A_1}{\sigma_1^2} + \frac{A_2}{\sigma_2^2} + \frac{A_3}{\sigma_3^2} + \dots \right)}{\left( \frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2} + \frac{1}{\sigma_3^2} + \dots \right)} \quad (16)$$

Onde  $A_1, A_2, \dots, A_n$  são as atividades calculadas para cada radionuclídeo da sub-série (para  $n$  radionuclídeos) e  $\sigma$  seus respectivos desvios (desvio padrão da média). A estimativa da atividade para cada radionuclídeo é acompanhada de seu respectivo desvio, portanto, é necessário propagar estes desvios no cálculo da atividade média ponderada. A equação para a propagação dos desvios da atividade média ponderada é dada por:

$$\sigma_{\bar{A}} = \frac{1}{\sqrt{\frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2} + \frac{1}{\sigma_3^2} + \dots}} \quad (17)$$

#### 4.3.2 Limite Mínimo de Detecção (LLD) e Atividade Mínima Detectável (MDA).

O limite mínimo de detecção (LLD) e a atividade mínima detectável (MDA) são grandezas imprescindíveis de serem determinadas em um sistema de detecção. Estes conceitos expressam um limite inferior nas medidas que precisa ser superado para que um dado radionuclídeo possa ser considerado como medido ou detectado.

O LLD expressa a mínima contagem líquida que se precisa obter em um fotopico para que se possa afirmar que o referido radionuclídeo foi medido, ou se faz presente naquela amostra. Assim, o LLD expressa em outras palavras a medida da habilidade de um sistema em detectar um raio gama na presença de interferência da radioatividade natural e do espalhamento Compton de raios gama de alta energia originados na fonte. O LLD para uma dada linha gama é dado pela seguinte expressão, com 95% de confiança:

$$LLD = 4,66\sqrt{F_c} \quad (18)$$

Onde  $F_c$  é a contagem do fundo Compton na região da linha gama que se deseja medir. Assim o limite mínimo de detecção é dado em contagens, uma vez que,  $F_c$  é dado em contagem.

Como pode ser visto pela última equação, o LLD depende apenas da medida do fundo Compton no pico de interesse. Contudo, tal fundo, depende de parâmetros importantes de um sistema de medida, como por exemplo, o tempo de medida, a radiação de fundo e da eficiência da blindagem do sistema de detecção.

Tendo definido o LLD, a atividade mínima detectável, é obtida quando substituído o valor calculado para o limite mínimo na equação que usada para determinar a atividade de um certo nuclídeo em uma amostra, equação 15, apresentada no item 4.3.1 (Expressão para a Estimativa da Atividade):

Então a equação para o cálculo da atividade mínima detectável fica sendo, para 95% de confiança:

$$MDA = \frac{LLD}{\epsilon P_\gamma m t} \quad (19)$$

Como o  $\text{LLD}$  é dado pela equação 18, substituindo o seu valor na equação 19, pode então obtermos que o  $\text{MDA}$  pode ser dado como:

$$MDA = \frac{4,66\sqrt{F_c}}{\varepsilon P_\gamma mt} \quad (20)$$

Como o  $\text{LLD}$  é dado em contagens como o  $N_L$ , a unidade da equação não se altera, e o  $\text{MDA}$  será dado em  $\text{Bq/kg}$ .

Esta grandeza depende da energia da radiação, da geometria de contagem, da blindagem do sistema, do tempo de medida, além de depender também das características físicas da amostra.

#### 4.3.3 Cálculo das Concentrações

Para o cálculo das concentrações dos radionuclídeos, faz-se uso dos valores de conversão mostrados na Tabela 5.

**Tabela 5** – Equivalência entre atividade específica de radionuclídeos em rochas e concentração de elemento, modificado de Iaea Tecdoc (2003).

<b>Concentração</b>	<b>Atividade (Bq/kg)</b>	<b>Radionuclídeo</b>
1% K	313	$^{40}\text{K}$
1 ppm U	12,35	$^{238}\text{U}$ ou $^{226}\text{Ra}$
1 ppm Th	4,06	$^{232}\text{Th}$

Onde as concentrações são dadas em % K (porcentagem de Potássio), ppm U (partes por milhão de Urânio) e ppm Th (partes por milhão de Tório). Com essa tabela pode-se, a partir das atividades que serão calculadas em Bq/kg conforme descrito no item 4.3.1, converter esses valores e determinar as concentrações de U e Th em ppm e de K em porcentagem.

#### 4.3.4 Calibração em Eficiência

Como visto anteriormente no item 4.3.1, na equação que será utilizada para o cálculo da atividade pode ser visto que esta depende da eficiência de detecção. Então, para que se possa determinar a atividade específica de cada radionuclídeo de interesse, deve-se conhecer previamente a eficiência de detecção para cada uma das energias em questão.

Assim, faz-se necessário obter uma equação de calibração em eficiência que relacione a área sob o pico desejado com a atividade deste radionuclídeo na amostra calibrada.

Com esta equação, pode-se então determinar a atividade do radionuclídeo de interesse nas amostras analisadas.

A referida equação é extraída do que chamamos de curva de eficiência, sendo a mesma construída a partir dos parâmetros de ajuste dessa curva.

A curva de eficiência é obtida a partir da medição de amostras de calibração. Estas amostras de calibração possuem uma atividade conhecida, e então, da mesma equação que usa-se para a determinação da atividade (equação 15), pode-se determinar a eficiência, da seguinte forma:

$$\varepsilon = \frac{N_L}{A.P_\gamma.m.t} \quad (21)$$

De prontidão, tem-se a massa da amostra e tempo de medida. O  $P_\gamma$  é um valor tabelado para a energia de cada radionuclídeo.  $N_L$  é a contagem líquida, que será obtida dos fotopicos presentes no espectro, também para cada energia respectiva ao pico analisado. Assim, como a sua atividade  $A$  é conhecida, pode-se inverter a equação 15 em relação a eficiência, resultando na equação 21 mostrada acima.

Como  $P_\gamma$  e  $N_L$  são característicos para cada linha gama, ou seja para cada energia, com esta equação poderá ser calculado para cada valor de energia, ou para cada radionuclídeo, um valor de eficiência. Para tal, monta-se então um gráfico da eficiência ( $\varepsilon$ ) em função da energia (E). Esta é a chamada curva de eficiência.

A partir das curvas de eficiência, pode-se determinar a eficiência para cada linha gama, possibilitando assim o cálculo da respectiva atividade. Para que se obtenha a eficiência para cada linha, usa-se a seguinte equação que relaciona os parâmetros dos ajustes linear das curvas de calibração, a energia e a eficiência:

$$\varepsilon = e^A E^B \quad (22)$$

Onde A e B são os parâmetros do ajuste linear de  $\ln \varepsilon$  versus  $\ln E$ . E é a energia da linha gama em KeV e  $\varepsilon$  é a eficiência para esta linha. No gráfico da curva de eficiência usamos  $\ln \varepsilon$  versus  $\ln E$  para linearizar a equação, já que essas duas grandezas se relacionam exponencialmente, conforme equação 22. O fato, dantes comentado nos itens 4.1.1.2 e 4.3.4, da eficiência de detecção ser função da energia, está explicitado na equação acima.

Para a utilização da amostra de calibração, alguns fatores precisam ser observados. As amostras calibradas precisam apresentar mesmas condições geométricas que as amostras que serão estudadas, como o tamanho do béquer e altura do preenchimento, além de uma composição química semelhante, para que os desvios devidos a estes dois parâmetros pudessem ser minimizados e desprezados. Estas amostras, ainda devem possuir densidades mais próximas possíveis em relação as amostras analisadas. Esses fatores são importantes, pois estão diretamente ligados ao efeito de auto-absorção e conseqüentemente à eficiência de detecção, que é justamente o que se espera obter com a medição destas amostras.

Por isso, as amostras calibradas foram elaboradas a partir da adição de material de atividade certificada em algumas das amostras medidas anteriormente. Assim se estará garantindo que estas amostras possuam a mesma geometria, composição química e densidade das amostras já medidas.

Foram preparadas duas amostras calibradas: uma com a adição de material certificado a uma das seis amostras de fosfato medidas, que possuem uma densidade de aproximadamente  $1,1 \text{ g/cm}^3$ , escolhida aleatoriamente; e uma outra a partir da adição de

material certificado a uma das amostras dos quatro tipos diferentes de rações, que possuem aproximadamente uma mesma matriz com densidade em torno de  $0,78 \text{ g/cm}^3$ .

Os espectros destas duas amostras utilizadas como matrizes para as amostras de calibração serão utilizados como espectros de fundo para as medidas das amostras com adição de material certificado. Tomou-se o devido cuidado para que o volume e também as massas das amostras calibradas fossem os mais próximos possíveis das matrizes de ração de fosfato já medidas, para que dessa forma fosse possível realizar a subtração dos espectros, obtendo assim os espectros líquidos com as áreas dos fotopicos de interesse respectivo apenas das contagens referente à atividade do material padrão. Para esse procedimento verificaram-se também as posições em canais de alguns fotopicos ao longo do espectro e o FWHM de ambos os espectros para as energias de interesse, obtendo assim uma subtração confiável, acarretando o mínimo de erro possível devido a essa subtração.

As duas amostras calibradas foram preparadas usando os seguintes materiais padrão da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA), identificados como: RGTh-1, RGU-1 e RGK-1. Essas amostras foram escolhidas por possuírem os radionuclídeos de interesse, ou seja que possuem as energias que desejamos quantificar em nosso trabalho, pois tais materiais serão usados para a determinação da eficiência de detecção.

Para a preparação das referidas amostras de calibração foi utilizado 50 g de cada dos três materiais certificados pela IAEA em ambas as amostras. Para realizar a mistura deste material com as duas matrizes escolhidas, primeiramente retiramos das duas amostras uma massa de 150 g, quantidade equivalente a massa de material padrão a ser adicionado às amostras. Em seguida medimos com o auxílio de uma balança, 50 g de RGTh-1, 50 g de RGK-1 e 50 g de RGU-1, para cada uma das duas amostras de calibração a serem preparadas.

O próximo passo foi misturar as 150 g de material com a massa das amostras. Para tal procedimento, toma-se 150 g da amostra a ser contaminada e juntando esta quantidade às 150 g do material certificado em uma grande bacia de plástico. E então estas quantidades são bastante misturadas, com o intuito de se alcançar uma boa homogeneidade.

Após a homogeneização de 300g (150g da matriz mais 150g do material padrão), adiciona-se à mistura mais 300 g da matriz, e novamente refaz-se o processo de mistura com o objetivo de obter uma homogeneidade. Em seguida adiciona-se o restante da matriz, que para a amostra de calibração feita com a ração foi de aproximadamente 200 g, e para a amostra feita com o fosfato bicálcico foi aproximadamente 600 g, também homogeneizando-os. Após este procedimento de mistura, acomodou-se as amostras preparadas em béqueres Marinelli de um litro, que é o mesmo porta amostra usado na

medição das demais amostras. Ao final, os dois béqueres com as amostras calibradas foram selados e guardados em local adequado por pelo menos quarenta dias, para se obter o equilíbrio secular entre o  $^{226}\text{Ra}$  e o  $^{222}\text{Rn}$ , da mesma forma que procedemos com as outras amostras.

Durante a preparação das amostras foram tomados todos os cuidados em relação à proteção radiológica, desde a escolha do local apropriado para a preparação das amostras, até utilização de monitor de radiação, dosímetro pessoal, jaleco, luvas descartáveis e máscaras descartáveis durante todos os procedimentos que envolviam manuseio ou algum tipo de manipulação dos materiais de atividade certificada.

A partir dos valores fornecidos pela IAEA para as concentrações de atividade para as amostras RGTh-1, RGU-1 e RGK-1 dadas em ppm e porcentagem, pode-se calcular a atividade de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  que foi imputada às duas amostras de calibração, pois sabe-se precisamente qual a massa de cada uma das três amostras de atividade certificada adicionadas em ambas amostras de calibração.

Para tais cálculos, pode se usar também da tabela 5 mostrada no item 4.3.3 (cálculo das concentrações), que apresentava a conversão de atividade específica para a concentração de atividade dos radionuclídeos.

A Tabela 6 mostra os valores de atividades nas amostras de calibração para os radionuclídeos em questão.

**Tabela 6** – Atividades de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  nas amostras de calibração em eficiência

	<b>Atividade (Bq/kg)</b>		
	$^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$
<b>Amostra 1 – Ração</b>	$322,3 \pm 1,9$	$209,3 \pm 3,9$	$900,2 \pm 5,8$
<b>Amostra 2- DCP</b>	$218,2 \pm 1,3$	$141,7 \pm 2,6$	$609,6 \pm 3,9$

#### 4.3.5 Validação da Metodologia

Ao se obter os resultados para as atividades de uma dada linha gama, é preciso, conforme já foi mencionado, levar em conta a eficiência de detecção. Essa eficiência é determinada a partir da curva de eficiência e dos seus parâmetros do ajuste linear. Assim, a confiabilidade dos resultados dependerá de quão boa é a curva de eficiência.

Para se verifique a confiabilidade e a precisão das nossas curvas de eficiência, faz-se uso da medição das amostras de validação. Estas amostras também são elaboradas com materiais de atividade certificada.

Assim, estas amostras serão medidas, e o valor da atividade para as linhas gama presentes nas amostras de validação será calculado usando a curva de eficiência obtida anteriormente. Ao final pode então comparar estes valores com os das atividades certificadas. A medida de quão próximo estarão estes dois valores, retrata a confiabilidade de nossos resultados.

Para o preparo da amostra de validação, é necessário, além de usar material de atividade certificada, observar para que as características desta amostra sejam iguais às das amostras de rotina, quais sejam: massa, densidade, geometria, matriz entre outras.

Assim como para a calibração em eficiência, foram preparadas duas amostras, uma para validação da curva de eficiência feita para as rações e outra para validar a curva feita para o fosfato.

As duas amostras foram preparadas a partir das amostras de calibração. Nos dois casos, foi retirado aproximadamente um terço da amostra de calibração, e preenchido este um terço agora faltante na amostra de calibração, com o mesmo material da amostra que foi utilizado para confeccioná-la (matriz). Dessa forma, certamente se mantém a mesma geometria, densidade e composição química da amostra de calibração, e apenas diminuindo a concentração de atividade da mesma em aproximadamente um terço.

A massa da amostra de calibração em eficiência para as rações foi de 778,8 g, onde foram retirados 250 g e adicionados 250 gramas de amostra matriz. A massa da amostra de calibração em eficiência para o fosfato foi de 1150,2 g, onde foram retirados 400 g, a qual foi substituída por 400 g da amostra matriz.

Considerando que todo o material de atividade certificada presente nas amostras de calibração estava distribuído de forma homogênea, pode-se então determinar a

redução na concentração de atividade apenas com uma regra de 56 três, após determinar quantos por centos representa as massas extraídas das duas amostras.

Para a amostra de validação para as rações, obteve-se que 250 g representa aproximadamente 32,11% da massa total, e assim a concentração de atividade foi reduzida em 32,11%.

Para a amostra de fosfato, obteve-se que as 400 g substituídas representam aproximadamente 34,78% do total, e esta também foi a porcentagem de redução da concentração de atividade.

Com esses dados pode-se então, juntamente com os valores da atividade para as amostras de calibração apresentados na tabela 6, calcular a atividade das amostras de validação. Os valores para estas atividades são mostrados na tabela 7.

**Tabela 7** – Atividades de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  nas amostras para a validação

	<b>Atividade (Bq/kg)</b>		
	$^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}$	$^{40}\text{K}$
<b>Amostra 1 – ração</b>	218,8 ± 1,3	142,1 ± 2,6	611,1 ± 3,9
<b>Amostra 2- DCP</b>	142,3 ± 0,8	92,4 ± 1,7	397,6 ± 2,5

Os dados apresentados na tabela 7 são os valores previstos para as amostras de calibração segundo a atividade do material certificado que foi adicionadas as mesmas. Para efetuar a comparação com as atividades que se obterá após a medição destas amostras, será usado o método da IAEA de comparação entre valores, utilizado na intercomparações internacionais para certificação de material. Neste método são avaliados a equivalência dos dois valores, ou seja, se estes podem ser considerados como iguais, e a precisão do valor medido no laboratório.

Para avaliar a equivalência entres os valores medidos e os previstos, primeiro é preciso que:

$$B_1 \leq B_2 \quad (23)$$

Sendo que:

$$B_1 = |V_{IAEA} - V_{Lab}| \quad (24)$$

Onde  $V_{IAEA}$  é o valor da atividade previsto, mostrado na tabela 7, e  $V_{Lab}$  é o valor obtido no laboratório para a atividade das amostras.

E  $B_2$  é igual a:

$$B_2 = 2,58\sqrt{D_{IAEA}^2 + D_{Lab}^2} \quad (25)$$

Onde  $D_{IAEA}$  é o desvio no valor previsto e  $D_{Lab}$  é o valor do desvio no atividade estimada no laboratório.

Após verificar que a equação 23 é verdadeira para os valores das atividades medidos no laboratório, falta testar os resultados quanto à precisão. A precisão  $P$  da medida no laboratório é dada pela equação abaixo, que relaciona as grandezas  $V_{IAEA}$ ,  $V_{Lab}$ ,  $D_{IAEA}$  e  $D_{Lab}$ , já descritas acima.

$$P = 100\sqrt{\left(\frac{D_{IAEA}}{V_{IAEA}}\right)^2 + \left(\frac{D_{Lab}}{V_{Lab}}\right)^2} \quad (26)$$

O valor de  $P$  é dado em porcentagem e precisa ser igual ou menor que o limite de aceitação para a precisão (LAP), fornecido pela IAEA para cada radiomulcideo. (IAEA-CU, 2007-03).

Então, para que o valor medido no laboratório possa ser considerável aceitável em relação ao previsto, a equação 23 deve ser verdadeira e o valor de P, obtido na equação 26, deve ser menor que o LAP para o respectivo analito.

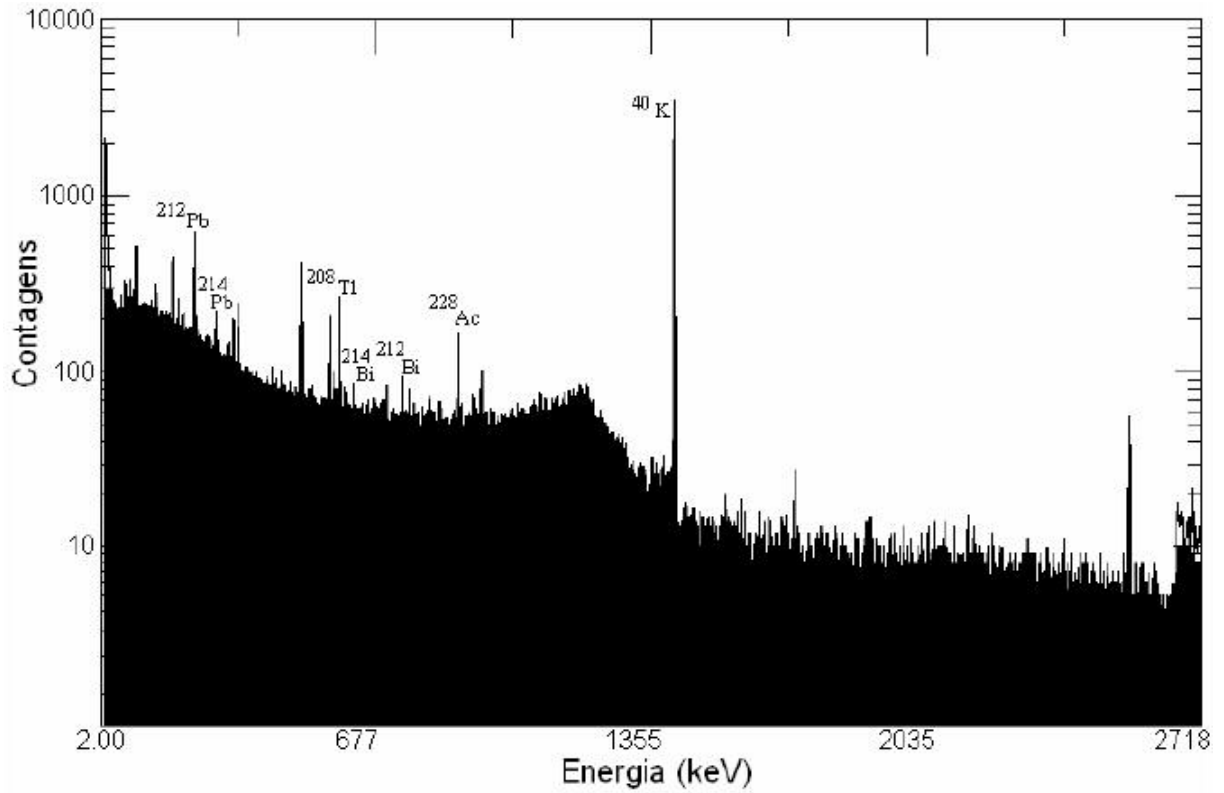
No capítulo dos resultados serão apresentadas as análises finais, obtidas das medições das amostras de validação, tanto para as rações quanto para o fosfato.

## 5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

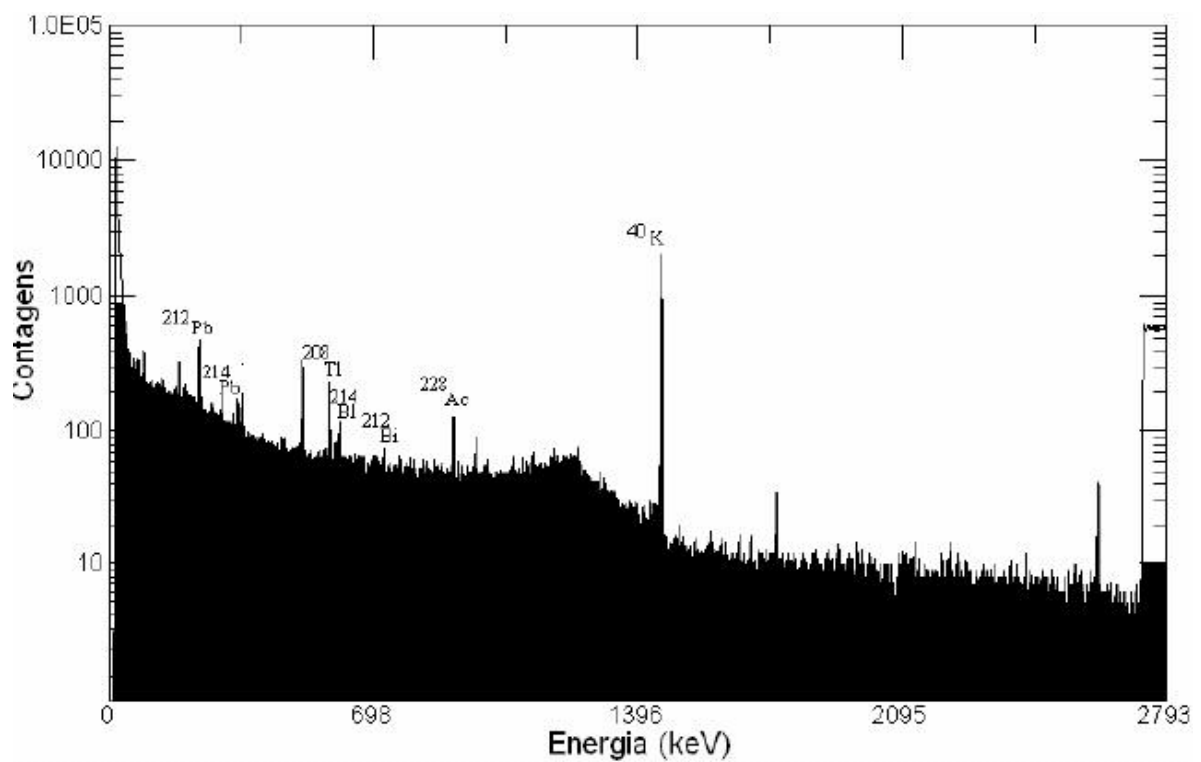
No presente capítulo, serão apresentados os resultados obtidos para as atividades para o  $^{40}\text{K}$  e das séries do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , seus desvios e as discussões pertinentes sobre a qualidade dos ajustes e a relevância dos resultados que neste trabalho pode-se obter.

### 5.1 ESPECTROS TÍPICOS OBTIDOS PARA AS RAÇÕES E O DCP.

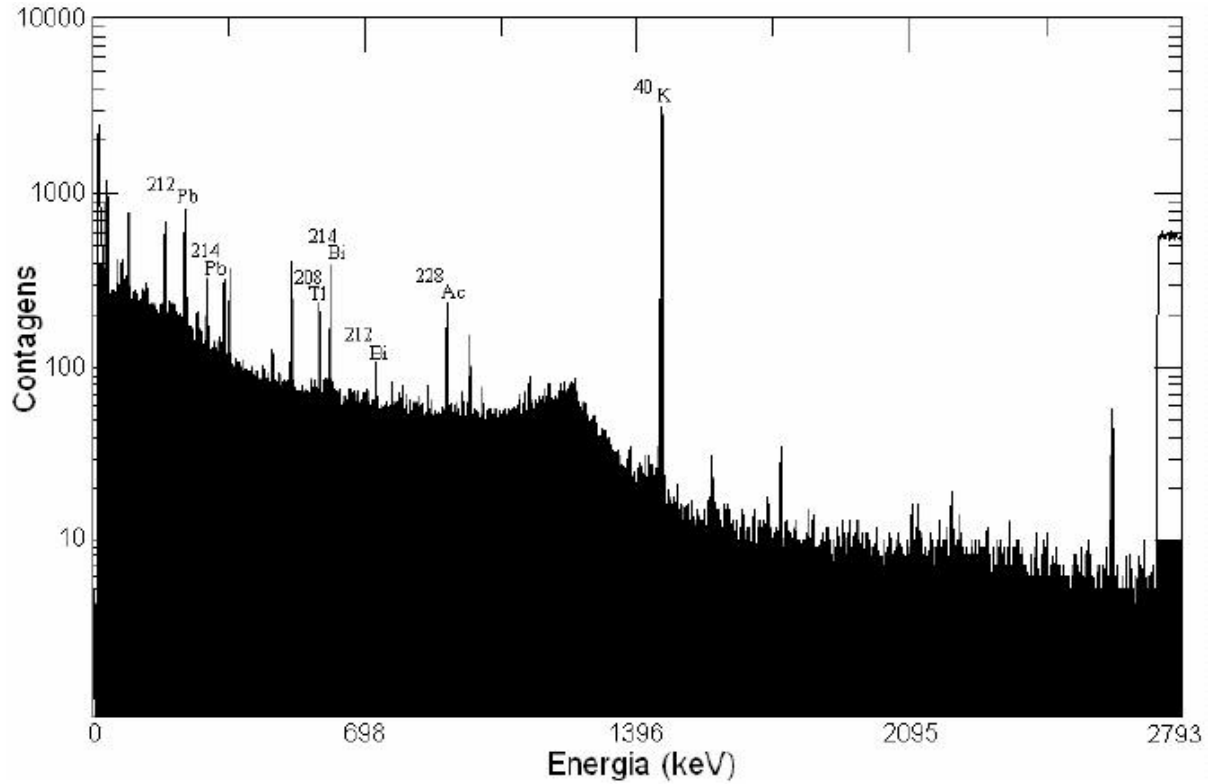
As figuras a seguir apresentam alguns exemplos de espectros típicos obtidos com a medição das amostras de rações e de fosfato bicálcico, destacando algumas das linhas gama para os radionuclídeos medidos em nosso trabalho. As linhas identificadas nos espectros são referentes respectivamente às energias de: 238,63 KeV ( $^{212}\text{Pb}$ ), 295,21 KeV ( $^{214}\text{Pb}$ ), 583,05 KeV ( $^{208}\text{Tl}$ ), 609,31 KeV ( $^{214}\text{Bi}$ ), 727,0 KeV ( $^{212}\text{Bi}$ ), 911,07 KeV ( $^{228}\text{Ac}$ ) e 1460,81 KeV ( $^{40}\text{K}$ ).



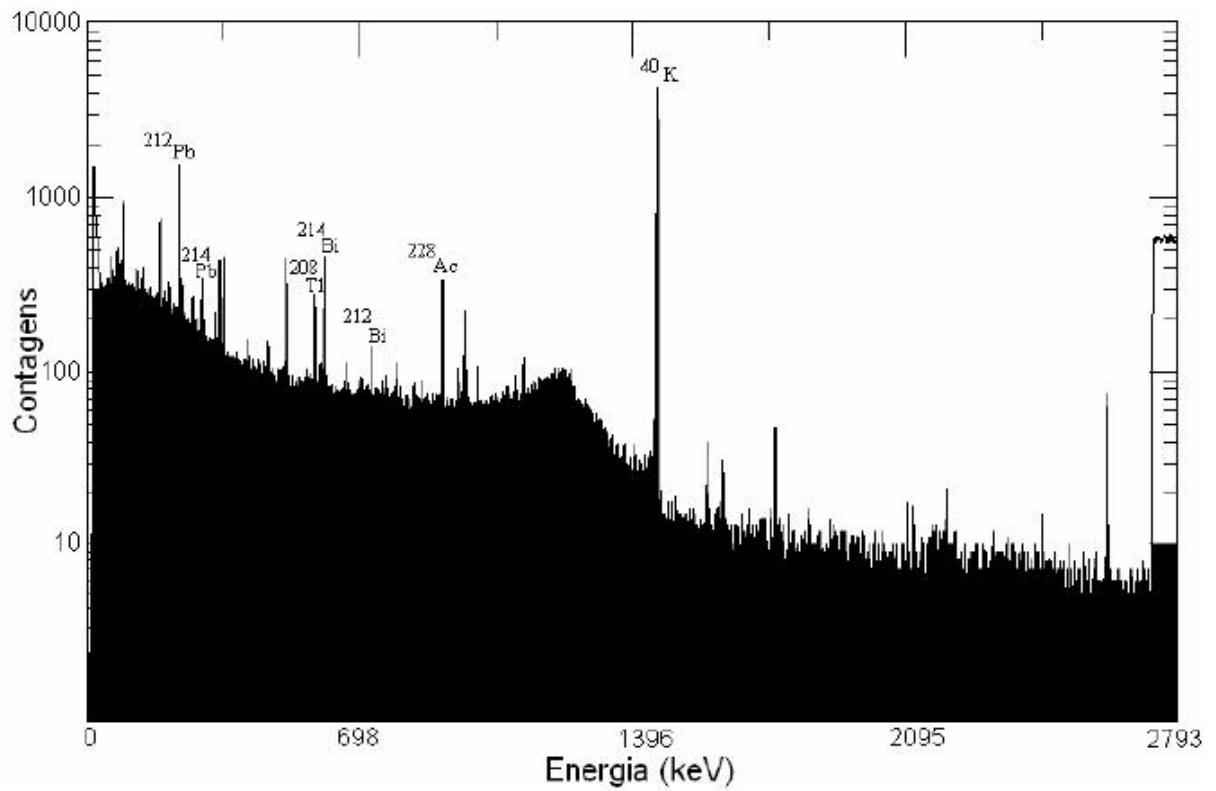
**Figura 6** – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para frango no início da vida



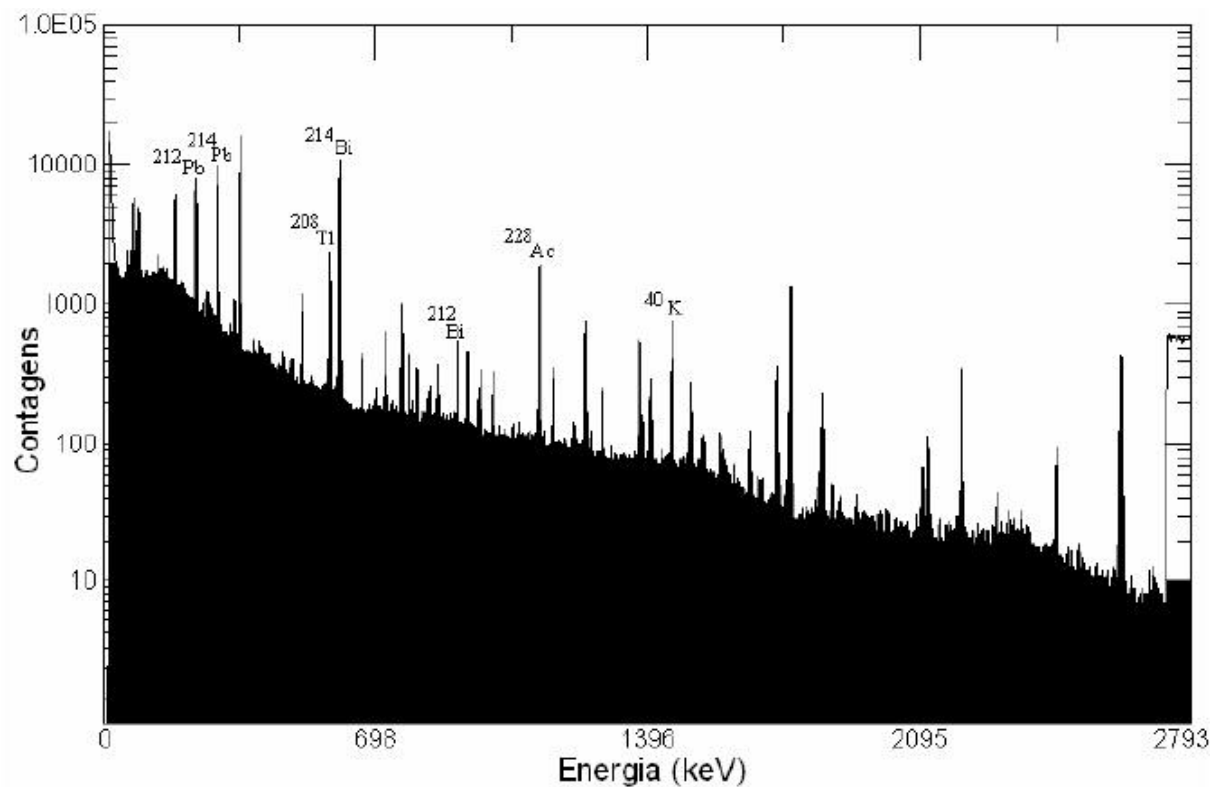
**Figura 7** – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para frango adulto



**Figura 8** – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para gado de corte



**Figura 9** – Exemplo de espectro obtido para amostra de ração para gado de leite

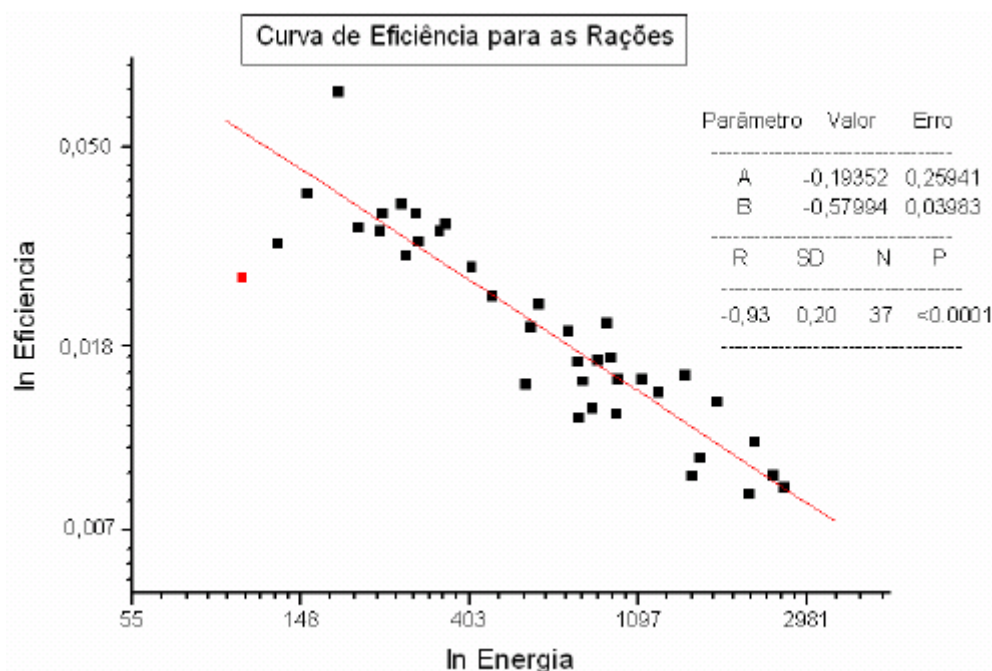


**Figura 10** – Exemplo de espectro obtido para a amostra de fosfato bicálcico (DCP)

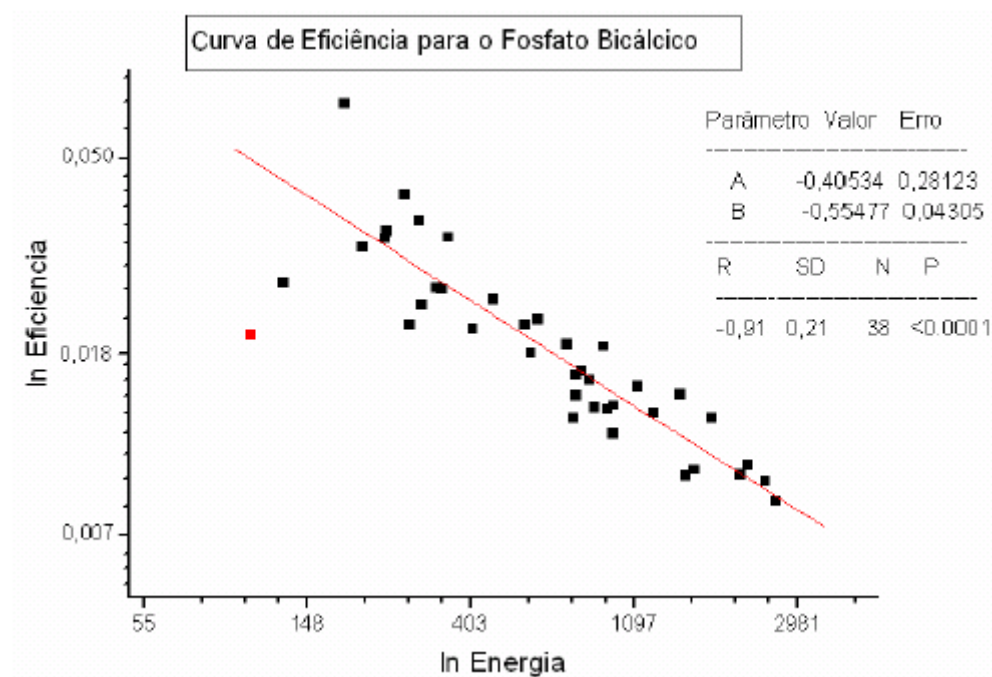
## 5.2 CURVA DE EFICIÊNCIA

Apresenta-se a seguir as duas curvas de calibração em eficiência utilizadas no presente trabalho, uma para as rações e outra para o DCP. Todo o processo de preparação das duas amostras de calibração, bem como o procedimento para a obtenção das curvas, foi descrito detalhadamente no item 4.3.4.

A curva de eficiência para as amostras de rações e para as amostras de DCP são mostrada a seguir respectivamente nas figuras 11 e 12.



**Figura 11** – Curva de calibração em eficiência para as amostras de rações



**Figura 12** – Curva de calibração em eficiência para as amostras de DCP

Os pontos marcados em vermelho nos gráficos se referem à energia de 105 KeV, e estão destacados por não entrarem nos ajustes das curvas. Determinou-se que a reta que ajusta os demais pontos não deveria passar pelos pontos destacados porque os mesmos

estão numa região de baixa energia, em torno de 100 KeV, onde tipicamente essa região de energia descreve uma curva. Assim, não seria viável usar esse ponto e nem ajustá-lo juntamente com os demais usando um ajuste linear. Além disso, todas as energias medidas nas amostras de rotina do presente trabalho, foram acima de 200 KeV.

Algumas linhas gama medidas em nossas amostras de calibração em eficiência, referente aos filhos das séries do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , foram suprimidas das curvas por critérios estatísticos de exclusão. Apresenta-se, respectivamente nos Anexos I e II, todas as linhas gama medidas na amostra de calibração para as rações e na amostra de calibração para o DCP.

Com as curvas de eficiência prontas e seus ajustes, pôde-se obter a eficiência a partir da equação 22. Como temos uma curva para as rações e uma para amostra de DCP, na equação 22, os parâmetros A e B usados para as rações e para o fosfato serão os das respectivas curvas.

Assim montamos a equação da eficiência para as rações, usando os parâmetros do gráfico mostrado na figura 11, sendo esta:

$$\varepsilon = e^{-0,19352 E^{-0,57994}} \quad (27)$$

$$\varepsilon = e^{-0,40534 E^{-0,55477}} \quad (28)$$

A partir das equações 27 e 28, obtêm-se as eficiências presentes na equação para o cálculo das atividades dos radionuclídeos, equação 15.

### 5.3 VALIDAÇÃO DA METODOLOGIA

Após as medições das amostras de validação para as rações e para o DCP, usou-se as respectivas curvas de eficiência para calcular as atividades de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  nestas, da mesma forma que para as amostras de rotina. Apresenta-se a seguir uma tabela mostrando os valores das atividades obtidos na amostra de validação para as rações, além dos valores previstos constantes na tabela 7.

**Tabela 8** – Atividades para o  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , medidas e previstas nas amostras de validação para as rações.

	Valor medido		Valor previsto	
	Atividade	Desvio	Atividade	Desvio
$^{40}\text{K}$	608,0	3,1	611,1	3,9
$^{238}\text{U}$	204,0	9,6	218,8	1,3
$^{232}\text{Th}$	143,5	1,6	142,1	2,6

Similarmente, apresenta-se a seguir uma tabela mostrando os valores das atividades obtidos na amostra de validação para o fosfato bicálcico, além dos valores previstos para a mesma amostra.

**Tabela 9** – Atividades para o  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , medidas e previstas nas amostras de validação para o DCP

	Valor medido		Valor previsto	
	Atividade	Desvio	Atividade	Desvio
$^{40}\text{K}$	401,9	2,8	397,6	2,5
$^{238}\text{U}$	123,9	8,3	142,3	0,8
$^{232}\text{Th}$	95,83	0,46	92,4	1,7

Tanto para a amostra de validação para as rações como na amostra de validação para o DCP os valores dos desvios apresentados para as atividades do  $^{40}\text{K}$ , foram obtidos a partir da propagação dos erros nas áreas líquidas, do tempo de medida e da massa das amostras. O mesmo aconteceu para alguns filhos do Urânio e Tório que apresentaram apenas uma linha gama, o que impossibilita o cálculo do desvio padrão da média.

A obtenção dos dados mostrados nas tabelas 8 e 9, possibilita que se faça a comparação entre os valores medidos e os previstos usando o método de intercomparação da IAEA descrito no item 4.3.5.

Substituindo os dados da tabela 8 nas equações 24, 25 e 26, se obterá os valores de  $B_1$ ,  $B_2$  e  $P$ , respectivamente, da amostra de validação para as rações. Estes resultados são apresentados nas tabelas 10 e 11.

**Tabela 10** – Comparação entre  $B_1$  e  $B_2$  para a amostra de validação para as rações

Comparação entre $B_1$ e $B_2$		
	$B_1$	$B_2$
$^{40}\text{K}$	3	13
$^{238}\text{U}$	15	25
$^{232}\text{Th}$	1	8

Como foi visto, para que o valor medido seja considerado aceitável, o valor de  $B_1$  precisa ser menor ou igual ao valor de  $B_2$ , como é o caso para os três radionuclídeos analisados na amostra de validação para as rações, como na tabela acima.

Como constatou-se a veracidade da equação 23 para os radionuclídeos medidos na amostra em questão, pode-se agora verificar a precisão dos resultados obtidos para a amostra de validação para as rações. Apresenta-se na tabela a seguir os valores da

precisão P para a medição das atividades na amostra de validação para as rações, juntamente com os valores do LAP, limite de aceitação para a precisão, para o radionuclídeo respectivo.

**Tabela 11** – Comparação entre P e LAP para a amostra de validação para as rações

<b>Limites de aceitação IAEA</b>		
	<b>Precisão (%)</b>	<b>LAP (%)</b>
$^{40}\text{K}$	0,8	15
$^{238}\text{U}$	4,7	20
$^{232}\text{Th}$	2,1	15

Os valores obtidos da precisão para  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  são muito bom pois, como foi visto, os mesmos deveriam ser menores ou iguais ao valor do LAP. Este resultado, somado ao fato de que os valores de  $B_1$  foram menores que os valores de  $B_2$  para os três radionuclídeos medidos na amostra de validação para as rações, valida os resultados para as atividades obtidos a partir da curva de eficiência para as rações, ou seja, todos os valores de atividades apresentados para as amostras de rações.

Da mesma forma que para a amostra de validação para as rações, ao substituir os dados da tabela 9 nas equações 24, 25 e 26, se obterá os valores de  $B_1$ ,  $B_2$  e P, respectivamente, para a amostra de validação para o DCP. Os resultados para os valores de  $B_1$  e  $B_2$  são apresentados na tabela 12.

**Tabela 12** – Comparação entre  $B_1$  e  $B_2$  para a amostra de validação para o DCP

<b>Comparação entre <math>B_1</math> e <math>B_2</math></b>		
	<b><math>B_1</math></b>	<b><math>B_2</math></b>
$^{40}\text{K}$	4	10
$^{238}\text{U}$	18	22
$^{232}\text{Th}$	3	5

Nota-se, pela tabela acima, que para os três radionuclídeos medidos na amostra de validação para o DCP, o valor de  $B_1$  foi sempre menor que o valor de  $B_2$ , o que torna os resultados obtidos para as atividades nesta amostra aceitável.

Tendo então comprovado ser verdadeira a equação 23 para os valores obtidos para a amostra de validação para o DCP, pode-se determinar a precisão P de tais medidas. Apresenta-se na tabela 13 os valores da precisão e do LAP para cada radionuclídeo medido.

**Tabela 13** – Comparação entre **P** e **LAP** para a amostra de validação para o DCP

<b>Limites de aceitação IAEA</b>		
	<b>Precisão (%)</b>	<b>LAP (%)</b>
$^{40}\text{K}$	0,9	15
$^{238}\text{U}$	6,7	20
$^{232}\text{Th}$	1,9	15

Como pode ser visto na tabela 13, todos os valores da precisão estão abaixo do limite estipulado pela IAEA para os radionuclídeos medidos, o que faz com que os nossos resultados obtidos para as atividades nas amostras de DCP estejam validados. Assim, como o mesmo já havia acontecido para a amostra de validação para as rações, isto mostra que as curvas de eficiência foram bem ajustadas e todos os resultados à serem apresentados neste capítulos são confiáveis.

#### 5.4 ATIVIDADE DOS RADIONUCLÍDEOS

Apresenta-se na tabela 14, todas as linhas gama usadas para estimar as atividades dos respectivos radionuclídeos mensurados em cada tipo de amostra medida neste trabalho.

**Tabela 14** – Energia das linhas gama em keV usadas para estimar as atividades dos respectivos radionuclídeos em cada uma das amostras.

	Nuclídeo	Tipo de amostra				DCP
		Rações para Frango		Rações para Gado		
		No início da vida	Adulto	De corte	De leite	
Série do $^{238}\text{U}$	$^{214}\text{Bi}$	1764,5	609,31	609,31	609,31	609,31
						1120,29
						1238,11
						2204,22
						768,36
						1764,49
$^{214}\text{Pb}$	351,92	295,21	295,21	295,21	295,21	
		351,92	351,92	351,92	351,92	
Série do $^{232}\text{Th}$	$^{228}\text{Ac}$	911,07	338,32	270,23	270,23	338,32
			911,07	463	463	463
			969,11	911,07	794,7	911,07
				969,11	911,07	969,11
					969,11	
	$^{212}\text{Bi}$	-	-	-	727	727
	$^{212}\text{Pb}$	238,63	238,63	238,63	238,63	238,63
						300,09
$^{208}\text{Tl}$	-	583	583	583	583	
$^{137}\text{Cs}$		661,66	661,66	661,66	661,66	661,66
$^{40}\text{K}$		1460,8	1460,8	1460,8	1460,8	1460,8

Com as equações da eficiência, equações 27 e 28, e a equação 15, pôde-se calcular as atividades para cada linha gama medida em cada uma das seis amostras para cada tipo de ração e para o fosfato. Após calcular as atividades para cada linha, reuniu-se os valores que correspondiam aos mesmos radionuclídeos, calculando a média aritmética destes valores, obtendo assim as atividades médias para cada radionuclídeo. Após obter os valores das atividades médias, calculou-se os respectivos desvios padrões da média, sendo estes depois multiplicados pelo devido fator de Student, correspondente o número de graus de liberdade, com 95% de confiança. Os parâmetros da distribuição de Student são apresentados no Anexo IV deste trabalho.

#### 5.4.1 Atividades nas Amostras de Ração

Primeiramente será apresentada uma tabela mostrando as atividades médias para os radionuclídeos medidos nas amostras de ração para frangos, juntamente com seus respectivos desvios e MDA.

**Tabela 15** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para os radionuclídeos medidos nas amostras de ração para frango, em Bq/kg.

Nuclídeos		Para Frangos					
		No início da vida			Adultos		
		A	Desvio	MDA	A	Desvio	MDA
Série <sup>238</sup> U	<sup>214</sup> Bi	-	-	0,217	0,303	0,064	0,19
	<sup>214</sup> Pb	-	-	0,149	0,197	0,036	0,13
Série <sup>232</sup> Th	<sup>228</sup> Ac	0,67	0,22	0,369	0,76	0,11	0,46
	<sup>212</sup> Bi	-	-	6,440	-	-	-
	<sup>212</sup> Pb	0,294	0,035	0,143	0,37	0,14	0,44
	<sup>208</sup> Tl	-	-	0,200	0,458	0,065	0,19
Césio	<sup>137</sup> Cs	-	-	0,037	-	-	0,184

Agora apresenta-se uma tabela com os resultados para as atividades dos radionuclídeos nas amostras de rações para gado.

**Tabela 16** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para os radionuclídeos medidos nas rações para gado, em Bq/kg.

Nuclídeos		Para Gado					
		De corte			De leite		
		A	Desvio	MDA	A	Desvio	MDA
Série <sup>238</sup> U	<sup>214</sup> Bi	1,60	0,24	0,32	1,310	0,073	0,213
	<sup>214</sup> Pb	1,38	0,25	0,47	1,34	0,23	0,29
Série <sup>232</sup> Th	<sup>228</sup> Ac	2,02	0,29	0,78	4,21	0,35	0,73
	<sup>212</sup> Bi	-	-	0,74	1,25	0,22	1,42
	<sup>212</sup> Pb	1,41	0,11	0,22	2,08	0,15	0,20
	<sup>208</sup> Tl	2,00	0,19	0,30	1,574	0,066	0,323
Césio	<sup>137</sup> Cs	-	-	0,29	-	-	0,107

Os dois filhos da série do <sup>238</sup>U, <sup>214</sup>Pb e <sup>214</sup>Bi, não apresentaram atividades maiores que o MDA para a ração para frangos no início da vida. Já para a ração para frangos adultos, os valores das atividades destes dois radionuclídeos foram respectivamente  $0,197 \pm 0,036$  e  $0,303 \pm 0,064$  Bq/kg. Para as rações para gado, os valores para as atividades destes nuclídeos foram da ordem de 4 ou 5 vezes maiores, sendo para as rações para gado de corte e para gado de leite respectivamente  $1,60 \pm 0,24$  e  $1,310 \pm 0,073$  Bq/kg para o <sup>214</sup>Bi, e  $1,38 \pm 0,25$  e  $1,34 \pm 0,23$  Bq/kg para o <sup>214</sup>Pb. Considerando os respectivos desvios, pode-se ver pela

tabela 16 que as atividades para o  $^{214}\text{Bi}$  e o  $^{214}\text{Pb}$  nas rações para gado de corte e de leite são equivalentes.

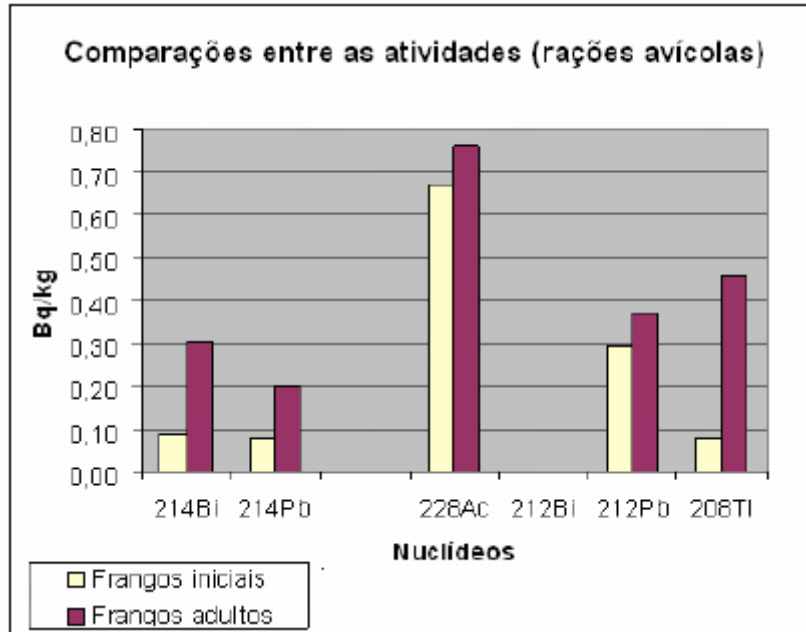
Dentre os filhos da série do  $^{232}\text{Th}$ , a atividade do  $^{212}\text{Bi}$  não superou o valor do MDA nas amostras de ração para frangos no início da vida e nem na ração para gado de corte; ao passo que nas amostras de ração para frango adulto não apareceu nenhuma linha gama referente a tal nuclídeo. Contudo, para a ração para gado leiteiro, a atividade do  $^{212}\text{Bi}$  foi de  $1,25 \pm 0,22$  Bq/kg.

O  $^{208}\text{Tl}$  também não superou o valor do MDA nas amostras de ração para aves no início da vida. Para as rações para frangos adultos, gado de corte e de leite, a atividade deste radionuclídeo foi respectivamente de  $0,458 \pm 0,065$ ,  $2,00 \pm 0,19$  e  $1,574 \pm 0,066$  Bq/kg.

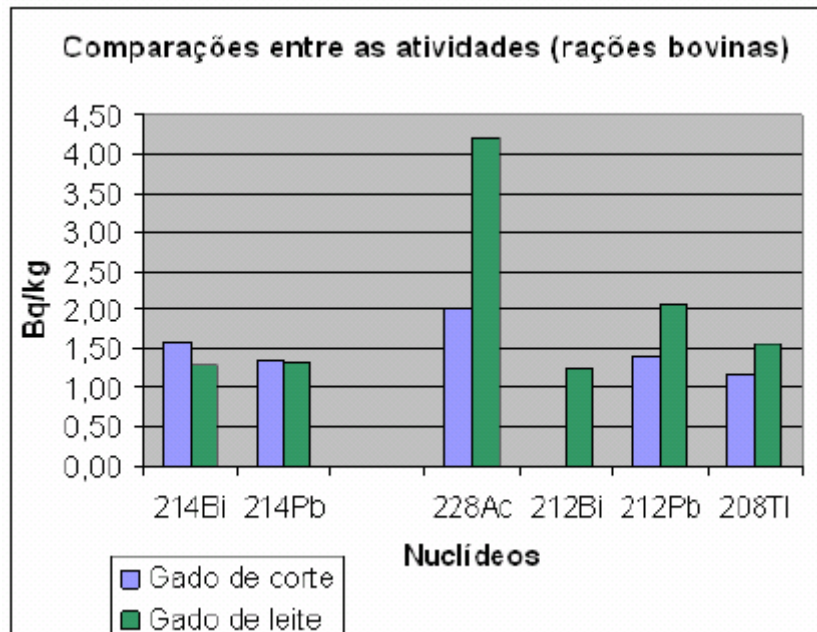
O  $^{212}\text{Pb}$  e  $^{228}\text{Ac}$  são os únicos radionuclídeos que apresentaram valores de atividades maiores que o MDA em todos os quatro tipos de ração. Nas rações para frangos novos e adultos, estes valores foram respectivamente de  $0,67 \pm 0,22$  e  $0,76 \pm 0,11$  Bq/kg para o  $^{228}\text{Ac}$ , e  $0,294 \pm 0,035$  e  $0,37 \pm 0,14$  Bq/kg para o  $^{212}\text{Pb}$ . Já nas rações para gado de corte e gado de leite, os valores das atividades estiveram de 3 até 7 vezes maiores, sendo estes respectivamente  $2,02 \pm 0,29$  e  $4,21 \pm 0,35$  Bq/kg para o  $^{228}\text{Ac}$ , e  $1,41 \pm 0,11$  e  $2,08 \pm 0,15$  Bq/kg para o  $^{212}\text{Pb}$ .

Para o  $^{137}\text{Cs}$ , a atividade mínima detectável foi de 0,037; 0,184; 0,29 e 0,107 Bq/kg respectivamente nas as rações para: frangos no início da vida, frangos adultos, gado de corte e gado de leite.

A seguir serão apresentados alguns gráficos mostrando comparações entre as atividades obtidas para os filhos do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , primeiro nas amostras de rações para frangos no início da vida e frangos adultos, e em seguida, comparando os valores das atividades nas rações para gado de corte e de leite.



**Figura 13** – Comparação entre as atividades dos radionuclídeos nas amostras de rações para frango.

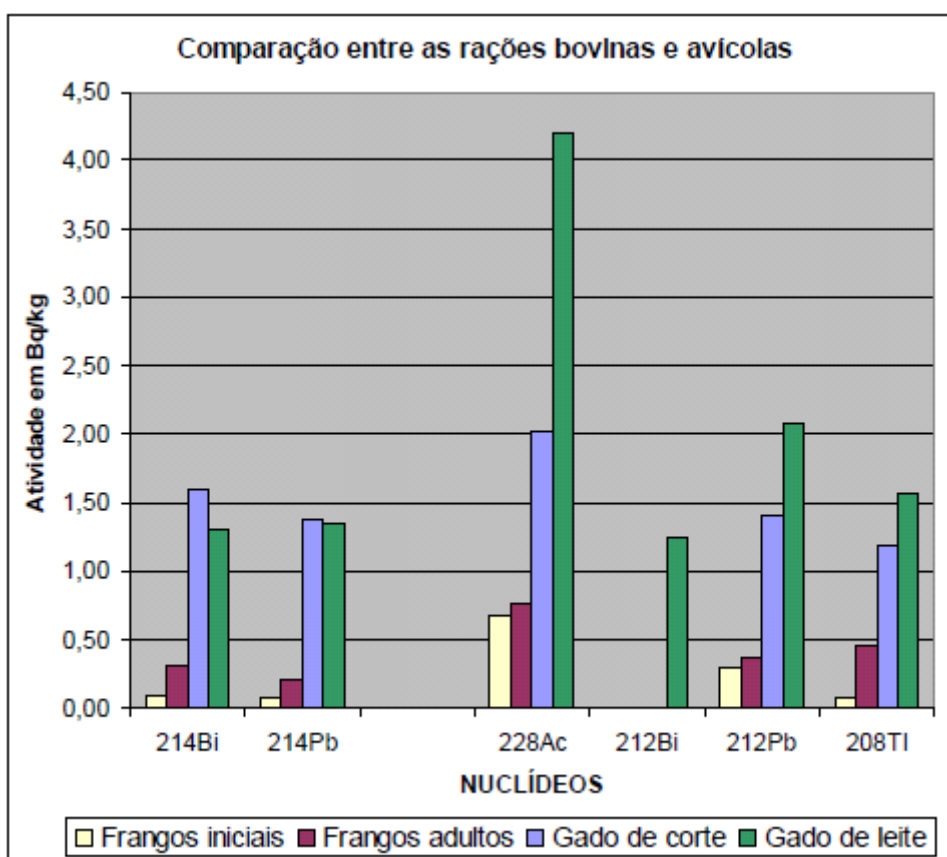


**Figura 14** – Comparação entre as atividades dos radionuclídeos nas amostras de rações para gado

Vê-se pelo gráfico mostrado na figura 13, que em geral a ração para frangos adultos apresenta maiores atividades tanto para os filhos do  $^{238}\text{U}$  como para os filhos do  $^{232}\text{Th}$ ; sendo que apenas para o  $^{228}\text{Ac}$  e o  $^{212}\text{Pb}$  as atividades em ambas rações são equivalentes

considerando os respectivos desvios, como pode ser visto na tabela 15. Já nas rações bovinas, as maiores atividades dos filhos do  $^{238}\text{U}$  estão na ração para gado de corte e, as maiores atividades dos filhos do  $^{232}\text{Th}$  estão na ração para gado de leite.

A fim de se comparar as atividades dos filhos das séries do Urânio e Tório entre as amostras de ração bovina e avícola, apresenta-se a seguir um gráfico mostrando as atividades dos radionuclídeos medidos nos quatro tipos de rações.



**Figura 15** – Comparação entre as atividades dos radionuclídeos nas rações avícolas e bovinas.

Considerando apenas os valores absolutos percebe-se que para o  $^{214}\text{Bi}$  e o  $^{214}\text{Pb}$ , pertencentes à série do  $^{238}\text{U}$ , a maior atividade é encontrada nas amostras de ração para gado de corte; contudo, conforme já mencionado, esses valores são equivalentes ao se considerar os intervalos de confiança.

Já para todos os filhos da série do  $^{232}\text{Th}$ , as maiores atividades apresentam-se nas amostras de ração para gado de leite. Pode-se verificar também que as atividades da

maioria dos filhos da série do Tório foram maiores que as dos filhos do  $^{238}\text{U}$  nos quatro tipos de ração, exceto para o  $^{212}\text{Pb}$  nas rações para frango adulto e nas rações para gado de corte, onde o mesmo apresentou atividade semelhante à dos filhos do  $^{238}\text{U}$ .

Após obter as atividades para os filhos das séries do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , pode-se, conforme apresentado no item 4.3.1, estimar as atividades dos pais das séries de decaimento radioativo.

Para tal, calcula-se a atividade média ponderada, descrita numericamente pela equação 16. Neste item, discutiu-se que no cálculo da atividade média para os pais das séries, o desvio apresentado para este valor deve ser o desvio propagado a partir dos desvios para os valores das atividades dos núcleos filhos. O desvio propagado pode ser obtido a partir da equação 17. Depois de obtido o valor deste desvio, este foi ainda multiplicado pelo fator de Student para o correspondente grau de liberdade com 95% de confiança.

Porém, frente aos possíveis desequilíbrios na série do  $^{238}\text{U}$  discutidos no capítulo 3, a partir das atividades do  $^{214}\text{Pb}$  e  $^{214}\text{Bi}$  será estimada a atividade para a sub-série do Rádio, já que os dois radionuclídeos citados acima estão depois do  $^{226}\text{Ra}$  na série, e não seria seguro supor a existência do equilíbrio entre este último radionuclídeo e o  $^{238}\text{U}$ . Considerando também o possível desequilíbrio que ocorre nas plantas com a série do Tório entre o  $^{232}\text{Th}$  e o  $^{228}\text{Th}$ , a partir das atividades dos filhos da série do Tório medidos, será estimada a atividade do  $^{228}\text{Ra}$ , já que as rações são constituídas principalmente a partir de plantas como a soja e o milho. 79

Apresenta-se então, nas tabelas 17 e 18, os valores para as atividades do  $^{226}\text{Ra}$  e do  $^{228}\text{Ra}$ , juntamente com os desvios para os mesmos e o MDA respectivo, para as amostras de rações avícolas e bovinas.

**Tabela 17** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para o  $^{226}\text{Ra}$  e o  $^{228}\text{Ra}$  medidos nas amostras de ração avícola, em Bq/kg.

	Para Frangos					
	No início da vida			Adultos		
	A	Desvio	MDA	A	Desvio	MDA
$^{226}\text{Ra}$	-	-	0,160	0,23	0,17	0,19
$^{228}\text{Ra}$	0,30	0,17	0,16	0,493	0,091	0,372

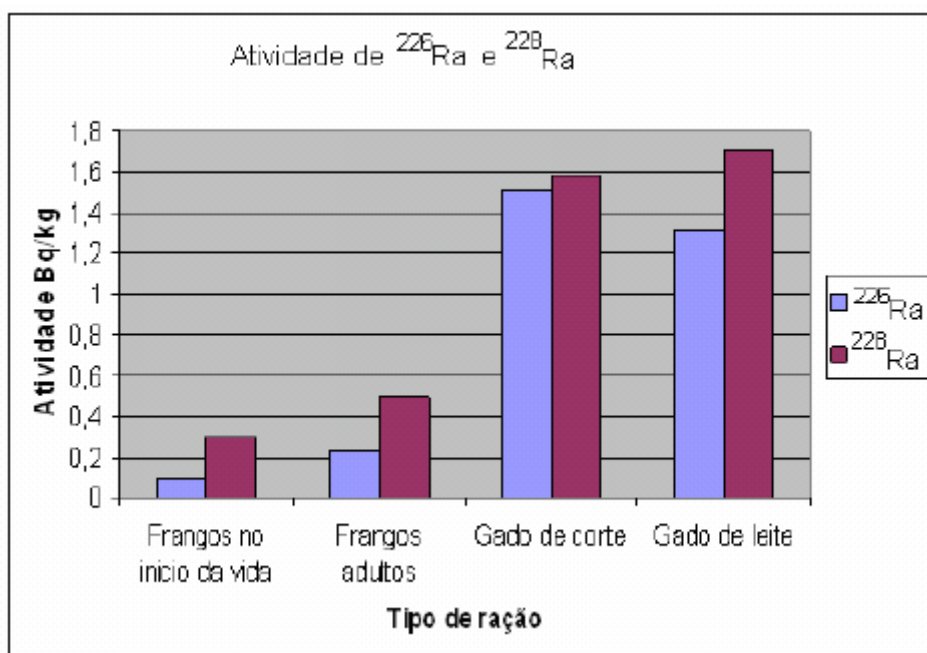
**Tabela 18** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para o  $^{226}\text{Ra}$  e o  $^{228}\text{Ra}$  medidos nas amostras de ração bovina, em Bq/kg.

	Para Gado					
	De corte			De leite		
	A	Desvio	MDA	A	Desvio	MDA
$^{226}\text{Ra}$	1,51	0,93	0,41	1,31	0,35	0,27
$^{228}\text{Ra}$	1,58	0,11	0,78	1,71	0,10	0,73

A atividade do  $^{226}\text{Ra}$  não esteve acima do valor do MDA nas amostras de ração para frangos ainda no início da vida; o que era de se esperar já que o mesmo aconteceu com os seus filhos medidos neste tipo de ração. Para as outras rações seus valores foram  $0,23 \pm 0,17$ ;  $1,51 \pm 0,93$  e  $1,31 \pm 0,35$  Bq/kg, respectivamente nas rações para frangos adultos, gado de corte e gado de leite.

Para o  $^{228}\text{Ra}$ , as atividades superam o valor do MDA em todas as amostras de rações. Nas rações para frango no início da vida e para frango adulto, seus valores foram, respectivamente, de  $0,30 \pm 0,17$  e  $0,493 \pm 0,091$  Bq/kg. Valores mais altos foram encontrados nas amostras de rações para gado de corte e de leite, sendo estes  $1,58 \pm 0,11$  e  $1,71 \pm 0,10$  Bq/kg respectivamente.

A partir dos valores apresentados nas tabelas 17 e 18, construiu-se o gráfico da figura 16, onde se apresenta uma comparação entre os valores das atividades obtidas para o  $^{228}\text{Ra}$  e o  $^{226}\text{Ra}$ , lembrando que o valor apresentado para a atividade de  $^{226}\text{Ra}$  na ração para frangos no início da vida é o valor do MDA, já que o mesmo não foi superado.



**Figura 16** – Comparação entre as atividades de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Ra}$  nas amostras de rações avícolas e bovinas

Vê-se claramente pelo gráfico anterior, que a atividade do  $^{228}\text{Ra}$  é maior que a atividade para o  $^{226}\text{Ra}$  em todos os tipos de ração; o que já era de esperar, uma vez que este mesmo padrão já havia sido observado quando comparou-se as atividades dos filhos da sub-série do  $^{228}\text{Ra}$  com os filhos da sub-série do  $^{226}\text{Ra}$ .

Pode-se observar pelo gráfico também, a diferença nos valores das atividades nas rações para frangos e nas rações para gado, sendo estes últimos aproximadamente 4 ou 6 vezes maior.

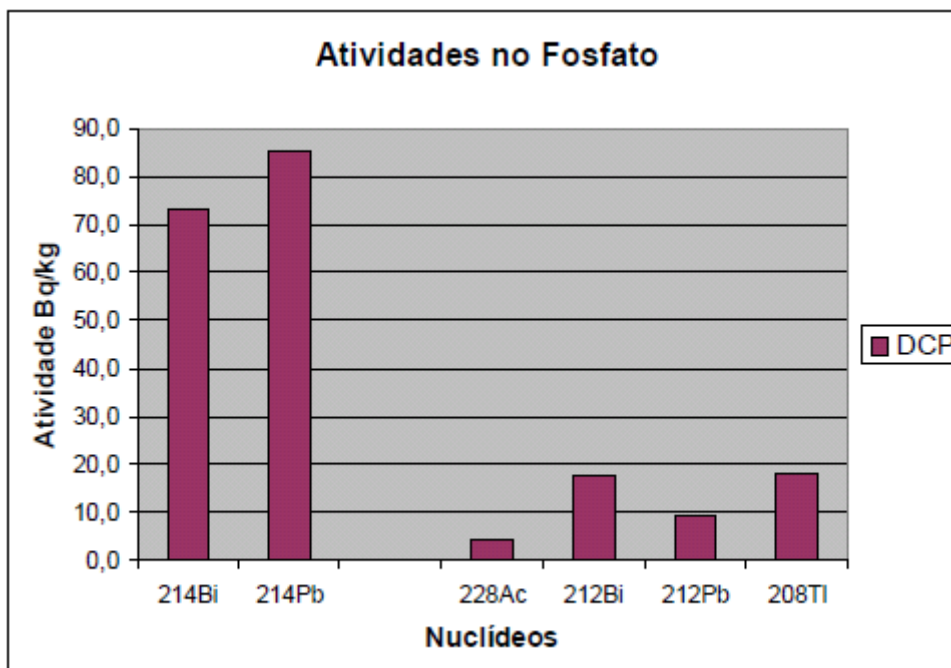
## 5.4.2 Atividades na Amostra de DCP

Mostra-se a seguir uma tabela apresentando as atividades médias para os nuclídeos medidos nas amostras de fosfato bicálcico, juntamente com seus respectivos desvios e MDA.

**Tabela 19** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para os radionuclídeos medidos nas amostras de fosfato bicálcico (DCP), em Bq/kg.

		Amostras de DCP		
		A	Desvio	MDA
Série $^{238}\text{U}$	$^{214}\text{Bi}$	73,0	9,7	0,7
	$^{214}\text{Pb}$	85,5	5,1	1,5
Série $^{232}\text{Th}$	$^{228}\text{Ac}$	4,20	0,54	1,23
	$^{212}\text{Bi}$	17,7	3,8	2,0
	$^{212}\text{Pb}$	9,5	2,2	0,6
	$^{208}\text{Tl}$	18,0	1,0	1,25
Césio	$^{137}\text{Cs}$	-	-	0,063

Claramente pode se observar uma atividade consideravelmente mais alta neste suplemento alimentar do que aquelas apresentadas para as rações animal. Vê-se também, que ao contrário das rações, no DCP as atividades dos filhos da série do Urânio são significativamente maiores que as atividades dos filhos do  $^{232}\text{Th}$ . Para melhor visualização deste fato, apresenta-se a seguir um gráfico comparando as atividades dos nuclídeos medidos nas amostras de fosfato bicálcico.



**Figura 17** – Comparação entre as atividades dos nuclídeos na amostra de DCP

As atividades dos filhos do  $^{238}\text{U}$ ,  $^{214}\text{Bi}$  e  $^{214}\text{Pb}$ , chegam a ser dezenas de vezes maiores que as atividades dos filhos da série do Tório. O  $^{228}\text{Ac}$ , que apresentou a maior atividade entre os nuclídeos medidos em todas as amostras de ração, tem um comportamento inverso para o fosfato bicálcico, assumindo o menor valor dentre as atividades registradas neste tipo de amostra.

O MDA para o  $^{137}\text{Cs}$  medido no fosfato bicálcico foi de 0,063 Bq/kg.

Conforme descrito no item 4.3.1, pode-se estimar as atividades para os pais das séries radioativas a partir dos valores das atividades dos respectivos filhos. Assim na amostra de DCP, pôde-se estimar a atividade do  $^{238}\text{U}$  a partir das atividades do  $^{214}\text{Pb}$  e do  $^{214}\text{Bi}$ ; e a atividade do  $^{232}\text{Th}$  a partir das atividades do  $^{212}\text{Pb}$ ,  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Bi}$  e  $^{208}\text{Tl}$ . Estas atividades são apresentadas na tabela 20.

**Tabela 20** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e o MDA para  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$  medidos nas amostras de fosfato bicálcico, em Bq/kg.

	DCP		
	A	Desvio	MDA
$^{238}\text{U}$	83	26	0,66
$^{232}\text{Th}$	7,79	0,70	1,25

Observa-se pela tabela 20, a enorme diferença entre os valores das atividades para o  $^{238}\text{U}$  e o  $^{232}\text{Th}$ , o que era de se esperar, já que como foi visto, as atividades dos filhos do  $^{238}\text{U}$  apresentaram-se consideravelmente maiores que as atividades para os núclídeos pertencentes à série do Tório. As diferenças entre as atividades chegam a ser de 10 vezes.

#### 5.4.3 Atividade para o $^{40}\text{K}$

Antes de apresentar os resultados obtidos para a atividade do  $^{40}\text{K}$ , é preciso discutir e considerar a correção para a atividade do mesmo devido à soma da sua linha gama com uma das linhas do  $^{228}\text{Ac}$ .

##### 5.4.3.1 Correção para a soma das linhas do $^{40}\text{K}$ (1460,8 Kev) e do $^{228}\text{Ac}$ (1459,2 Kev)

O  $^{228}\text{Ac}$ , filho da série do Tório, possui uma de suas linhas na energia de 1459,2 KeV, ou seja, situada muito próxima à linha gama referente ao  $^{40}\text{K}$ . Assim, como o

pico do Potássio normalmente possui um FWHM grande em amostras naturais, o detector de HPGe não consegue resolver esses dois picos, e registra-se os mesmos como sendo um só pico, atribuído ao Potássio.

Como em todas as amostras medidas no presente trabalho fazem-se presente tanto o  $^{228}\text{Ac}$  como o  $^{40}\text{K}$ , é conveniente verificar a contribuição do  $^{228}\text{Ac}$  na atividade do  $^{40}\text{K}$  e, se necessário, efetuar as devidas correções.

Segundo Lavi et al. (2004), o erro no cálculo da atividade do  $^{40}\text{K}$  devido à soma de sua linha com a linha do  $^{228}\text{Ac}$ , depende das concentrações de  $^{40}\text{K}$  e de  $^{232}\text{Th}$ , já que o  $^{228}\text{Ac}$  é filho deste último, e é dado pela equação 29.

$$Erro_{^{40}\text{K}} = 9,3 \frac{Th}{K} \quad (29)$$

Onde Th e K são respectivamente as atividades de  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  na amostra em questão, e o erro é dado em porcentagem. Com os valores destas atividades, já foram calculados para as rações e para o DCP, pôde-se, a partir da equação 29, encontrar os valores dos erros nas atividades do  $^{40}\text{K}$ . Estes são apresentados na tabela 21.

**Tabela 21** – Erro no cálculo da atividade do  $^{40}\text{K}$  devido à soma com o pico do  $^{228}\text{Ac}$

	Amostra	$^{232}\text{Th}$ (Bq/kg)	$^{40}\text{K}$ (Bq/kg)	Th/K	Erro (%)
Rações	Frangos iniciais	0,3	304	0,00099	0,0092
	Frangos adultos	0,493	236	0,0021	0,019
	Gado de corte	1,581	346,8	0,0046	0,042
	Gado de leite	1,71	402	0,0043	0,040
	DCP	7,79	47,3	0,17	1,53

Observa-se pela tabela 21, que o erro na atividade do  $^{40}\text{K}$  nas amostras de rações são pequenos, sendo estes menores que 0,05 %, podendo assim ser desprezados, pois tais correções ficaram dentro do próprio desvio na atividade. Isto se deve ao fato de que a atividade do  $^{232}\text{Th}$  é muito menor que a do  $^{40}\text{K}$  nestas amostras.

Já na amostra de DCP, o erro na atividade do  $^{40}\text{K}$  chega a ser aproximadamente 1,5 %, isto porque neste tipo de amostra a concentração de Tório é bem maior, e a de Potássio bem menor do que nas amostras de ração.

Assim deve-se fazer a correção na atividade do  $^{40}\text{K}$  apenas para as amostras de DCP, já que nas rações, como vimos, o erro cometido no cálculo da atividade devido à soma dos picos é desprezível.

Feito as estimativas dos erros, apresenta-se agora na tabela 22 as atividades calculadas para o  $^{40}\text{K}$  nas amostras de ração e de DCP, já com a devida correção.

**Tabela 22** – Atividade (A), desvio com 95% de confiança e MDA para o  $^{40}\text{K}$  nas amostras de rações e no DCP, em Bq/kg.

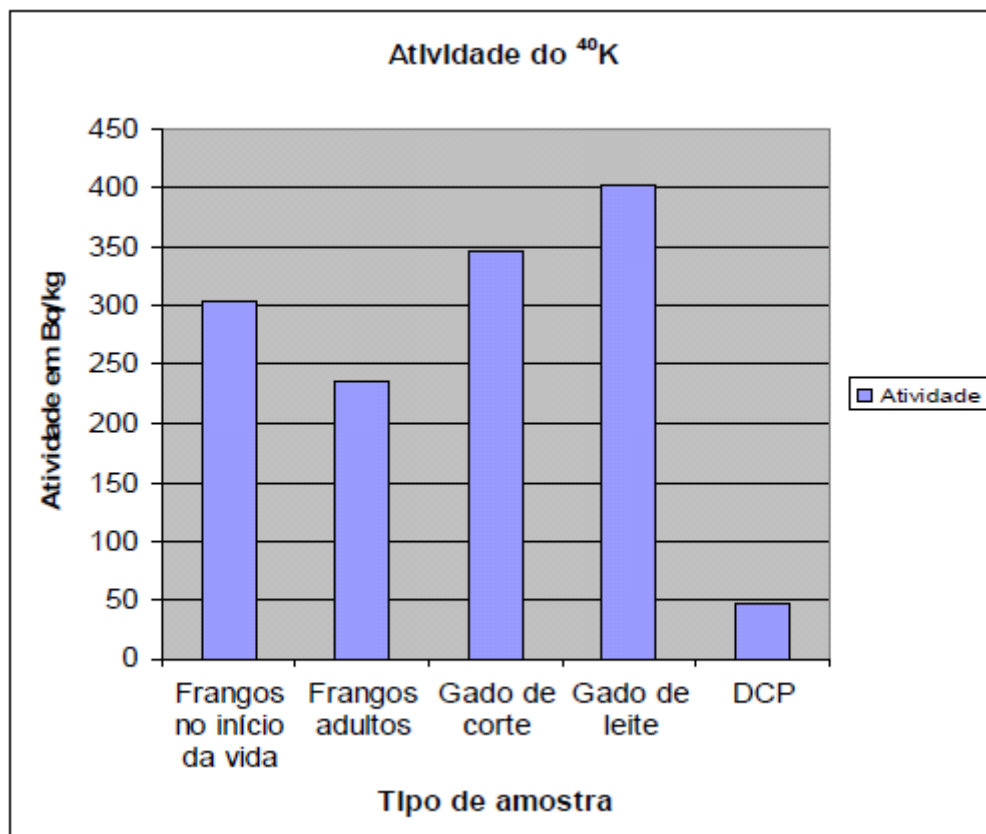
	<b>Amostra</b>	<b>A</b>	<b>Desvio</b>	<b>MDA</b>
<b>Rações</b>	<b>Frangos iniciais</b>	<b>304</b>	<b>15</b>	<b>2</b>
	<b>Frangos adultos</b>	<b>236</b>	<b>11</b>	<b>1,5</b>
	<b>Gado de corte</b>	<b>346,8</b>	<b>8,5</b>	<b>2,4</b>
	<b>Gado de leite</b>	<b>402</b>	<b>14</b>	<b>2,8</b>
	<b>DCP</b>	<b>46,6</b>	<b>2,8</b>	<b>1,7</b>

A atividade do  $^{40}\text{K}$  esteve sempre da ordem de centenas de Becquerel por quilograma, apresentando seu maior valor nas amostras de ração de gado leiteiro,  $402 \pm 14$  Bq/kg, e seu menor valor na ração para aves adultas,  $236 \pm 11$  Bq/kg. Nas rações para gado de corte e frangos no início da vida, sua atividade foi respectivamente  $346,8 \pm 8,5$  e  $304 \pm 15$

Bq/kg. O fato da atividade do  $^{40}\text{K}$  ser bem mais elevada que as dos demais radionuclídeos, já era de se esperar pois este isótopo do Potássio tem uma abundância na natureza bem maior que os filhos das séries do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ .

Apesar das amostras de ração apresentarem atividades bem menores que a amostra de DCP para as séries de Urânio e Tório, suas atividades para o  $^{40}\text{K}$  chegam a ser até aproximadamente 9 vezes maiores que a atividade do mesmo na amostra de DCP, como é o caso para as amostras de ração para gado de leite.

Apresenta-se a seguir um gráfico comparando os valores encontrados para a atividade do  $^{40}\text{K}$ .



**Figura 18** – Comparação entre as atividades do  $^{40}\text{K}$  nas amostras de rações avícolas e bovinas e no fosfato bicálcico (DCP)

#### 5.4.4 Cálculo das Concentrações

Após obter os valores para as atividades do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$  para a amostra de DCP e atividades de  $^{40}\text{K}$  nas amostras de rações e no DCP em Bq/kg, pode-se então, conforme descrito no item 4.3.3, estimar as concentrações de Urânio, Tório e Potássio a partir do uso da tabela 5. Devido a indicações da existência de desequilíbrio nas séries do Urânio e do Tório nas amostras de rações, não se pôde obter para estas amostras as atividades de  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , o que inviabilizou o cálculo das concentrações de Urânio e Tório nas rações.

Apresenta-se a seguir uma tabela com valores das concentrações de Urânio e Tório no DCP, e de Potássio para as amostras de rações e de fosfato bicálcico.

**Tabela 23** – Concentrações de Urânio e Tório no DCP, e de Potássio para as amostras de rações e de fosfato bicálcico.

Concentrações de Urânio, Tório e Potássio					
	Rações para frangos		Rações para gado		DCP
	Iniciais	Adultos	De corte	De leite	
<b>K (%)</b>	0,97	0,75	1,11	1,28	0,15
<b>U (ppm)</b>	-	-	-	-	6,72
<b>Th (ppm)</b>	-	-	-	-	1,92

Pode-se agora comparar as concentrações de Urânio, Tório e Potássio na amostra de fosfato bicálcico com valores de concentrações encontrados na literatura para estes elementos em algumas rochas brasileiras. Apresenta-se na tabela 24 esta comparação, sendo que para os trabalhos de Ferreira (2008), Carlos (2004) e para a formação Serra de Santa Elena medida no trabalho de Ribeiro (2001), os resultados apresentados mostram as variações das concentrações de Urânio, Tório e Potássio nas respectivas formações.

**Tabela 24** – Comparação entre as concentrações medidas na amostra de DCP e dados da literatura de concentrações em amostras de rochas

Referencia	Amostra	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
Presente trabalho	DCP	6,72	1,92	0,15
Ferreira (2008)	Rochas (formação Ira ti)	1,4 - 57,2	0,7 - 12,4	0,1 - 2
Carlos (2004)	Rochas (formação Ira ti)	1,2 - 12,7	0,4 - 3,2	0,02 - 0,2
Carlos (2004)	Rochas (formação Corumbataí)	0,54 - 3,1	0,2 - 15,2	0,01 - 3,5
Ribeiro (2001b)	Rochas (formação Serra da Santa Elena)	1,0 - 2,4	2,7 - 7,1	0,7 - 2
Ribeiro (2001b)	Rochas (formação Sete Lagoas)	-	2,0*	0,35*
Ribeiro (2001b)	Rochas (Palmas do Monte Alto)	4,9**	15,1**	3,8**

\*Valor médio para a formação

\*\* Valor para um ponto específico da formação

Pode-se observar que as concentrações de Tório e Potássio no DCP estão dentro dos intervalos de valores de metade do conjunto de rochas apresentados, enquanto que para o Urânio em apenas duas delas.

#### 5.4.5 Comparação das Atividades com a Literatura

São poucos os dados encontrados na literatura sobre atividade em amostras de ração animal. Por isso, apresenta-se a seguir uma tabela comparando apenas os valores das atividades encontrados nas amostras de DCP, com os dados similares encontrados na literatura conforme os artigos já citados no capítulo 2 deste trabalho.

**Tabela 25** – Comparação das atividades nas amostras de DCP com dados da literatura

Referência	Amostra	Atividade em Bq/kg			
		<sup>40</sup> K	<sup>238</sup> U	<sup>232</sup> Th	<sup>137</sup> Cs
Presente trabalho	DCP	46,6	83	7,79	<0,063*
Arruda-Neto (1997).	DCP A	-	2444	-	-
	DCP B	-	2154	-	-
	DCP C	-	1633	-	-
	DCP D	-	1043	-	-
	DCP E	-	388	-	-
	DCP F	-	26	-	-
Casacuberta (2007)	DCP A	<5,47*	1138	<157*	<0,53*
	DCP B	28	1046	<148*	<0,44*
	DCP C	<9,3*	20	<86*	<0,67*
Suaeia (2005)	DCP	148	<2*	10	-
	PR**	<45*	14	56	-

\*Valores menores que o limite de detecção

\*\*Rochas fosfáticas (PR)

O trabalho de Arruda-Neto (1997) mediu seis marcas diferentes de fosfato bicálcico comercializadas no Brasil, os quais foram nomeados de A a F. O trabalho de Suaeia (2005) também mediu uma amostra de fosfato bicálcico comercializado no Brasil, além de uma amostra de rocha fosfática, que é a matéria prima para o DCP. Já no artigo de Casacuberta (2007), foram medidas três tipos de amostras de DCP comercializadas na Espanha, sendo que a amostra de DCP C era para o consumo humano.

Os valores das atividades do <sup>40</sup>K não superaram os limites de detecção para as amostras de DCP A e DCP C do trabalho de Casacuberta (2007), já para a amostra DCP B medida neste trabalho, a atividade do Potássio foi cerca de 28 Bq/kg, que é um valor da mesma ordem que o encontrado no presente trabalho. Já em Suaeia (2005), o valor da

atividade para o Potássio  $^{40}\text{K}$  foi aproximadamente três vezes maior que a encontrada no presente trabalho, sendo esta 148 Bq/kg.

Para o  $^{238}\text{U}$ , as atividades em cinco das seis amostras medidas pelo trabalho de Arruda-Neto (1997), estiveram bem acima que o valor encontrado no presente trabalho. Os valores das atividades nas amostras de DCP A, B, C, D e E foram respectivamente 2444, 2154, 1633; 1043 e 388 Bq/kg. Já a sexta amostra medida neste trabalho, a DCP F, apresentou uma atividade de 26 Bq/kg, valor este cerca de três vezes menor que o medido no presente trabalho. No trabalho de Casacuberta (2007), os valores para o  $^{238}\text{U}$  nas duas primeiras amostras de DCP, A e B, foram respectivamente 1138 e 1046 Bq/kg, que são valores bem superiores ao obtido no presente trabalho. Já a amostra de DCP C, também medida em Casacuberta (2007), a atividade de  $^{238}\text{U}$  foi 20 Bq/kg, cerca de quatro vezes menor que o valor obtido nas amostras do presente trabalho. No artigo de Saueia (2005), foram apresentados valores muito baixos para a atividade do  $^{238}\text{U}$ , sendo estes menores que 2 Bq/kg.

Para as atividades do  $^{232}\text{Th}$ , o alto limite de detecção não foi superado em nenhuma das três amostras de DCP medidas no trabalho de Casacuberta (2007), sendo tais limites respectivamente 157, 148 e 86 Bq/kg. No trabalho de Saueia (2005), o valor da atividade do  $^{232}\text{Th}$  foi de 10 Bq/kg, um valor muito próximo ao medido no presente trabalho.

Os valores medidos para o  $^{137}\text{Cs}$  no trabalho de Casacuberta (2007), não superaram o limite de detecção, que foram iguais a 0,53; 0,44 e 0,47 Bq/kg respectivamente para as amostras de DCP A, B e C. Estes valores são, em média, aproximadamente 10 vezes maior que o limite de detecção para o  $^{137}\text{Cs}$  medido no presente trabalho.

## 6 CONCLUSÕES

Tendo verificado pela validação da metodologia que os resultados obtidos com as curvas de eficiência do presente trabalho são aceitáveis, concluímos que os valores para as atividades nas amostras são válidos e confiáveis, além de atestar as curvas construídas para calibração em eficiência do sistema, e o procedimento de preparação das amostras de calibração.

Dentre as amostras de rações, as menores atividades foram encontradas nas amostras de rações para frangos no início da vida. Nesta ração, os valores das atividades para o  $^{208}\text{Tl}$ ,  $^{212}\text{Bi}$ ,  $^{214}\text{Pb}$  e para  $^{214}\text{Bi}$  não superaram o valor do MDA. Já a atividade para o  $^{228}\text{Ra}$  pôde ser expressa a partir das atividades dos outros filhos medidos, o  $^{228}\text{Ac}$  e o  $^{212}\text{Pb}$ .

As maiores atividades encontradas dividiram-se entre dois tipos de rações: para os filhos da série do Tório, ou da sub-série do  $^{228}\text{Ra}$ , as maiores atividades foram obtidas na ração para gado de leite. Para os filhos da série do  $^{238}\text{U}$ , ou da sub-série do  $^{226}\text{Ra}$ , os maiores valores foram encontrados na ração para gado de corte. Contudo, quando calculou-se a atividade média ponderada para os pais das séries, a atividade do  $^{228}\text{Ra}$  superou a atividade do  $^{226}\text{Ra}$  mesmo na amostra de ração para gado de corte, sendo que tomando os valores estimados, a atividade do  $^{228}\text{Ra}$  esteve acima da atividade do  $^{226}\text{Ra}$  em todas as amostras de ração.

Entre os filhos das séries do Urânio e Tório, o  $^{228}\text{Ac}$  apresentou a maior atividade nos quatros tipos de ração. O efeito de crescimento do  $^{228}\text{Ra}$  nas plantas, já discutido, poderia explicar a maior atividade do  $^{228}\text{Ac}$ , já que este se encontra logo abaixo do  $^{228}\text{Ra}$  e imediatamente antes do  $^{228}\text{Th}$  na série de decaimento. Isso também poderia explicar o desequilíbrio observado entre o  $^{228}\text{Ac}$  e os demais filhos da série do Tório medidos, já que estes últimos se encontram abaixo do  $^{228}\text{Th}$  na série. 93

No DCP medido, tanto para os radionuclídeos pertencentes à série do Urânio como para os pertencentes à série do Tório, as atividades foram significativamente maiores. Nesta amostra, o  $^{214}\text{Pb}$  obteve a maior atividade,  $85,5 \pm 5,1$  Bq/kg, sendo que este valor é cerca de dezenas de vezes maior que a atividade do mesmo radionuclídeo medido nas

rações. Seguindo um comportamento oposto ao das rações, o  $^{228}\text{Ac}$  apresentou, dentre os radionuclídeos medidos, a menor atividade,  $4,20 \pm 0,54$  Bq/kg. Também opostamente ao comportamento observado nas rações, na amostra de DCP, os valores das atividades dos filhos do  $^{238}\text{U}$  foram muito maiores que as atividades dos filhos da série do Tório. O mesmo padrão é observado no trabalho de Casacuberta (2007), onde, os valores das atividades de  $^{238}\text{U}$  nas amostras de DCP foram cerca de 10 vezes maiores que as atividades do  $^{232}\text{Th}$ .

As altas concentrações de atividades no DCP, podem levar a conclusão de que talvez isto explique as mais altas atividades nas amostras de ração para gado de corte e de leite, pois uma diferença básica entre estas rações é que as mesmas têm o fosfato bicálcico como parte integrante da sua composição, o que não acontece com os dois tipos de rações para frangos. Contudo a contribuição para a atividade nas rações bovinas devido ao acréscimo de DCP não pode ser precisada.

As atividades na ração para frango adulto do  $^{214}\text{Pb}$  e  $^{214}\text{Bi}$ , filhos da sub-série do  $^{226}\text{Ra}$ , não se mostraram iguais, levando em conta os desvios das atividades. Contudo, tanto nas amostras de ração para gado de corte como para gado de leite, os valores das atividades destes dois radionuclídeos mostraram-se equivalentes. O mesmo padrão é também observado para os filhos da sub-série do  $^{226}\text{Ra}$  na amostra de DCP, indicando um possível equilíbrio na série do Urânio, ou pelo menos na sub-série do  $^{226}\text{Ra}$ . Porém, como esses dois radionuclídeos se encontram depois do  $^{226}\text{Ra}$  e do  $^{222}\text{Rn}$  na cadeia de decaimento do Urânio, fica limitado afirmações sobre o equilíbrio na série.

Assim concluí-se que, num trabalho futuro, seria interessante tentar medir, talvez até usando outra técnica, outros filhos da série do Urânio que prioritariamente se localizem antes do  $^{226}\text{Ra}$  na cadeia de decaimento, para que possamos verificar o equilíbrio, ou não, na série como um todo.

Para as atividades dos filhos da sub-série do  $^{228}\text{Ra}$  na ração para frango no início da vida, nenhum valor mostrou-se concordante. Na ração para frango adulto, os valores das atividades do  $^{208}\text{Tl}$  e do  $^{212}\text{Pb}$  apresentaram-se como equivalentes, porém estes diferem do valor da atividade do  $^{228}\text{Ac}$ . Na ração para gado de corte, apenas as atividades do  $^{208}\text{Tl}$  e do  $^{228}\text{Ac}$  apresentaram valores iguais, sendo que na ração para gado de leite, nenhum dos filhos da sub-série do  $^{228}\text{Ra}$  apresentou valores de atividades equivalentes entre si.

As atividades do  $^{40}\text{K}$  resultaram entre 236 e 402 Bq/kg nas amostras de rações, valores bem mais altos que as atividades do  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e suas séries de decaimento nestas amostras. Por outro lado, para o DCP a atividade do  $^{40}\text{K}$ , além de ser bem menor que a atividade deste radionuclídeo nas amostras de rações, foi apenas cerca da metade do valor da atividade do  $^{238}\text{U}$  no DCP. O mesmo comportamento da atividade do  $^{40}\text{K}$  é observado no trabalho de Casacuberta (2007). Isto pode ser explicado pelo trabalho de Saueia (2005) onde foram mostrados resultados para as atividades em amostras de rochas fosfáticas e ácido fosfórico, matérias primas do DCP. Os valores apresentados mostram uma baixa concentração de  $^{40}\text{K}$  nas rochas fosfáticas e também no ácido fosfórico, o que explicaria os valores as atividades encontradas no DCP, já que são as rochas fosfáticas e o ácido fosfórico que dão origem ao mesmo.

Os valores para as atividades do  $^{137}\text{Cs}$  resultaram abaixo do limite de detecção para todas as amostras de rações e para o fosfato bicálcico.

Na comparação de resultados do presente trabalho com dados da literatura, verificamos que o valor para a atividade do  $^{238}\text{U}$  na amostra de DCP é bem menor que a maioria dos dados encontrados para as atividades deste radionuclídeo. Talvez isso deva-se a um dos processos de manufatura do DCP, a digestão da rocha fosfática, onde há uma separação entre o Urânio e o Rádio, sendo este último carregado pelo  $\text{CaSO}_4$  de maneira que boa parte do Rádio acaba não indo para o ácido fosfórico, o qual dá origem ao DCP (Unsear, 1982). Se este fosse o caso para o DCP medido no presente trabalho, estaríamos subestimando a atividade do ao calculá-la a partir das atividades do  $^{214}\text{Pb}$  e  $^{214}\text{Bi}$ , pois conforme comentado, estes são elementos depois do  $^{226}\text{Ra}$  na série do Urânio. Isto salienta o interesse de, em trabalhos futuros, medir os filhos da série do Urânio que estejam antes do  $^{226}\text{Ra}$  na cadeia.

Com os dados já obtidos neste trabalho, uma continuação interessante para o mesmo seria, a partir dos valores das atividades nas rações, das dietas dos respectivos animais e do ser humano, estimar a dose efetiva por ingestão à qual esses animais e o homem que se alimenta dos mesmos estariam expostos.

Apresenta-se a seguir uma tabela com valores das concentrações de Urânio e Tório no DCP, e de Potássio para as amostras de rações e de fosfato bicálcico.

## REFERÊNCIAS

ARRUDA-NETO, J. D. T; Tavares M. V.; Filadelfo, M. Concentrations of uranium in animal feed supplements: Measurements and dose estimates. **Journal of Radiounalytical and Nuclear Chemistry**, v. 221, n 1-2, p.97-104, 1997.

AZOUAZI, M.; Ouahidi, Y.; Fakhi, S.; Andres, Y.; Abbe, J. Ch. Benmansour M. Natural radioactivity in phosphates, phosphogypsum and natural waters in Morocco. **Journal of Environmental Radioactivity**, v.54, p. 231-242, 2001.

BACCHI, M. A. **Quantificação de terra em carregamentos de cana-de-açúcar pela determinação de radionuclídeos de ocorrência natural**. 1996. Tese (Doutorado) – Centro de Energia Nuclear na Agricultura, USP, Piracicaba, 1996.

BASTOS, R. O.; Appoloni, C. R. **Radioatividade de rochas provenientes das formações geológicas pertencentes à bacia hidrográfica do rio Tibagi**. 2008. Tese (Doutorado em Física) – Universidade Estadual de Londrina, 2008

CASACUBERTA, N.; Masqué, P.; Garcia-Orellana, J.; Bruach-Menchén, J.; M. Sanchez-Cabeza J.A.; Villa, Hurtado, M. S.; Manjón, G.; Garcia-Tenorio, R. **Dicalcium Phosphate: Contents Of Uranium Decay Series**. Sevilla, Espanha:NORM V, 19 - 22 Mar. 2007.

CURRIE, L. A. Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination. **Analytical Chemistry**, v. 40, n.3, p. 586-593, 1968.

DURANCE, E. M. **Radioactivity in geology: principles and applications**. Chichester, England: Ellis Horwood, 1986 – 97.

FERREIRA, A. O. ; Appoloni, C. R. **Distribuição de radionuclídeos em um afloramento de sedimentos permianos da formação Iratí na bacia do Paraná**. 2008. Dissertação (Mestrado em Física) - Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2008.

FIRESTONE, R. B. **Table of isotopes**, 1999.

IAEA-CU-2007-03, World-wide open proficiency test.

IAEA-TECDOC-1363. **Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data**. Vienna, Austria: IAEA, 2003.

IAEA-Technical Reports Series 295. **Measurements of radionuclides in foods and the environment**. Vienna, Austria, 1989.

CHAO, J. H.; Niu, N.; Chiu, C. Y.; Lin, C. A potential dating technique using  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$  ratio for tracing the chronosequence of elemental concentrations in plants. **Applied Radiation and Isotopes**, v.65, p.641–648, 2007.

KATHREN, R. L. NORM Sources and their origins. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 49, p. 149 – 168, 1998.

KNOLL, G. F., “**Radiation Detection and Measurement**”. 3<sup>rd</sup> ed, New York: John Wiley & Sons, Inc., 2000.

LAVIA, N. Groppib, F. Alfassic, Z.B. On the measurement of  $^{40}\text{K}$  in natural and synthetic materials by the method of high-resolution gamma-ray spectrometry. **Radiation Measurements**, v.38, p. 139 – 143, 2003

LEO, W. R., “**Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments**”. 2<sup>nd</sup> ed, Berlin Heidelberg: Springer-Verlag, 1994 – 98.

SANTOS R. N. ; Marques, L. S. ; Brenha-Ribeiro F. Estudo do equilíbrio radioativo das séries do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$  em rochas vulcânicas das ilhas da Trindade e Martin Vaz. **Geochimica Brasiliensis**, v. 14, n.1, p. 135-153, 2000.

SAUEIA, C. H.; Mazzilli, B. P. ; Favaro, D. I. T. Natural radioactivity in phosphate rock, phosphogypsum and phosphate fertilizers in Brazil. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 264, n. 2, p. 445 - 448, 2005.

SCHEIBEL, V. ; Appoloni, C. R. **Determinação das doses efetivas por ingestão de farinhas de cereais através da espectrometria de raios gama**.2006. Tese (Doutorado em Física) – Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2006.

SHEPPARD, S. C.; Sheppard, M.I.; Ilin, M.; Tait, J.; Sanipelli, B. Primordial radionuclides in Canadian background sites: secular equilibrium and isotopic differences. **Journal of Environmental Radioactivity**, v.99, p. 933 – 946, 2008.

UNSCEAR. United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation, *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Report, United Nations Scientific Committee On The Effects Of Atomic Radiation, New York. 1993.

UNSCEAR. United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation, *Sources and Effects of Ionizing Radiation*. Report, United Nations Scientific Committee On The Effects Of Atomic Radiation, New York. 2000.

ZULLIGER, M. R.; Middleman, L. M.; Aitken, D. Linearity and Resolution of Semiconductor Radiation Detectors. **IEEE Transactions on Nuclear Science**, v. 16, p 47-61, 1969.

**ANEXOS**

ANEXO 1 – Linhas Gama Detectadas na Amostra de Calibração em Eficiência para as Rações

**Tabela 26** – Linhas gama detectadas na amostra de calibração para as rações

	Area líquida (contagens)	Desvio (contagens)	Energia (keV)	Nuclídeo	P gama
1	2739	170	105	Ac-228	0,016
2	2783	106	129,08	Ac-228	0,023
3	3216	142	154,2	Ac-228	0,009
4	51856	341	186,21	Ra-226	0,0351
5	15257	200	209,28	Ac-228	0,0381
6	93179	412	238,63	Pb-212	0,435
7	50503	323	241,92	Pb-214	0,0712
8	25397	306	270,23	Ac-228	0,0344
9	6594	167	278	Tl-208	0,0233
10	142156	430	295,21	Pb-214	0,1815
11	7002	132	300,09	Pb-212	0,0327
12	4892	119	328	Ac-228	0,031
13	33771	240	338,32	Ac-228	0,1126
14	260066	563	351,92	Pb-214	0,351
15	7481	166	409,51	Ac-228	0,0195
16	14822	195	463	Ac-228	0,045
17	762	80	562,3	Ac-228	0,0089
18	86270	341	583	Tl-208	0,307
19	217033	506	609,31	Bi-214	0,446
20	21	45	661,66	Cs-137	0,85
21	20286	190	727	Bi-212	0,0735
22	1043	71	755,18	Ac-228	0,0104
23	126	34	763,13	Tl-208	0,0073
24	17171	211	768,36	Bi-214	0,0476
25	2337	99	772,17	Ac-228	0,0145
26	3337	102	785,46	Bi-212	0,0107
27	9193	139	794,7	Ac-228	0,0434
28	2047	86	835,5	Ac-228	0,0153
29	10750	147	860,37	Tl-208	0,0455
30	76498	316	911,07	Ac-228	0,266
31	8059	131	934,06	Bi-214	0,307
32	9300	151	964,6	Ac-228	0,052
33	34769	233	969,11	Ac-228	0,1623
34	48365	263	1120,29	Bi-214	0,147
35	17734	192	1238,11	Bi-214	0,0578
36	100007	353	1460,81	K-40	0,1067
37	4139	103	1509,23	Bi-214	0,0208
38	4620	108	1588	Ac-228	0,0326
39	44382	234	1764,49	Bi-214	0,151
40	2122	75	2118,55	Bi-214	0,0117
41	11812	142	2204,22	Bi-214	0,0498
42	3102	91	2447,86	Bi-214	0,0155
43	43308	228	2614,66	Tl-208	0,356

ANEXO 2 – Linhas Gama Detectadas na Amostra de Calibração em Eficiência para o Fosfato Bicálcico

**Tabela 27** – Linhas gama detectadas na amostra de calibração para o DCP.

	Área líquida (contagens)	Desvio (contagens)	Energia (keV)	Nuclídeo	P gama
1	4506	137	105	Ac-228	0,016
2	8528	107	129,08	Ac-228	0,023
3	2755	98	154,2	Ac-228	0,009
4	51828	359	186,21	Ra-226	0,0351
5	17123	229	209,28	Ac-228	0,0381
6	204294	526	238,63	Pb-212	0,435
7	34769	279	241,92	Pb-214	0,0712
8	20452	268	270,23	Ac-228	0,0344
9	6914	168	278	Tl-208	0,0233
10	144386	428	295,21	Pb-214	0,1815
11	10769	160	300,09	Pb-212	0,0327
12	11230	205	328	Ac-228	0,031
13	40365	258	338,32	Ac-228	0,1126
14	255629	551	351,92	Pb-214	0,351
15	5679	133	409,51	Ac-228	0,0195
16	15260	192	463	Ac-228	0,045
17	2648	95	562,3	Ac-228	0,0089
18	78563	331	583	Tl-208	0,307
19	210212	490	609,31	Bi-214	0,446
20	19706	185	727	Bi-212	0,0735
21	1888	94	755,18	Ac-228	0,0104
22	113	33	763,13	Tl-208	0,0073
23	16679	194	768,36	Bi-214	0,0476
24	2952	117	772,17	Ac-228	0,0145
25	6096	131	785,46	Bi-212	0,01964
26	10115	149	794,7	Ac-228	0,0434
27	3404	113	835,5	Ac-228	0,0153
28	8716	136	860,37	Tl-208	0,0455
29	70542	305	911,07	Ac-228	0,266
30	9026	139	934,06	Bi-214	0,0307
31	8656	139	964,6	Ac-228	0,052
32	31426	228	969,11	Ac-228	0,1623
33	48430	273	1120,29	Bi-214	0,147
34	16594	178	1238,11	Bi-214	0,0578
35	94403	342	1460,81	K-40	0,1067
36	4262	104	1509,23	Bi-214	0,0208
37	4486	104	1588	Ac-228	0,0326
38	42242	225	1764,49	Bi-214	0,151
39	2423	78	2118,55	Bi-214	0,0117
40	10799	136	2204,22	Bi-214	0,0498
41	3091	87	2447,86	Bi-214	0,0155
42	41602	217	2614,66	Tl-208	0,356

### ANEXO 3 – Comparação entre Medidas Realizadas em uma Mesma Amostra em Datas Diferentes

Duas amostras foram medidas duas vezes cada uma em dias diferentes. Uma das amostras foi de ração para frangos no início da vida, denominada A-6 e a outra amostra era de fosfato bicálcico, denominada D-2. Estas eram amostras de rotina e foram escolhidas aleatoriamente. A amostra A-6 foi medida primeiramente no dia 11/04/2008, e depois medida em 10/08/2008, A amostra de DCP, D-2, foi primeiro medida em 06/03/2008, sendo que sua medição foi repetida em 11/08/2008.

Apresenta-se nas tabelas a seguir os dados extraídos a partir das medidas das amostras, comparando os valores obtidos em diferentes datas.

Para as duas tabelas seguintes, temos que:

$A_B$  é a área bruta do pico dada em contagens

$A_L$  é a área líquida do pico dada em contagens.

D é o desvio da área líquida dado em contagens.

$C_{ent}$  é a centróide do pico dada em keV.

**Tabela 28** – Comparação entre medições de uma amostra de ração em datas diferentes.

Amostra A-6 medida em 11/4/2008					Amostra A-6 medida em 10/8/2008			
	$A_B$	$A_L$	D	$C_{ent}$	$A_B$	$A_L$	D	$C_{ent}$
1	3093	598	37	237.15	3095	612	37	238.05
2	1200	113	21	337.01	1235	92	16	337.69
3	1661	314	34	350.68	1778	309	28	351.19
4	1006	99	15	582.02	1033	75	15	582.69
5	1156	139	21	608.18	1337	150	23	608.83
6	918	81	18	910.48	951	95	19	911.07
7	653	49	15	968.55	713	36	16	968.68
8	27587	22983	181	1460.93	28221	24263	177	1460.50


**Tabela 29** – Comparação entre medições de uma amostra de DCP em datas diferentes.

Amostra D-2 medida em 6/3/2008					Amostra D-2 medida em 11/8/2008			
	A <sub>B</sub>	A <sub>L</sub>	D	C <sub>ent</sub>	A <sub>B</sub>	A <sub>L</sub>	D	C <sub>ent</sub>
1	47230	11757	153	238.65	42924	12965	151	238.05
2	33606	11725	150	242.22	33474	12361	151	241.30
3	12974	1470	113	270.35	13798	1808	125	269.71
4	7231	471	52	277.50	6990	406	50	277.01
5	61448	50027	251	295.46	59553	44120	238	294.69
6	8765	1397	71	300.17	8253	1464	69	299.74
7	4642	60	28	328.11	4670	58	28	327.77
8	7602	1279	66	338.67	7488	1067	56	337.86
9	99124	69954	314	351.93	99686	78660	315	351.44
10	3769	322	51	463.17	3780	264	44	462.43
11	17165	11965	134	583.48	15520	11100	127	583.08
12	75790	70387	281	609.62	76054	71006	281	609.08
13	5151	2685	77	727.67	4928	2592	75	726.99
14	10105	6166	118	768.76	9884	6195	113	768.30
15	3814	1436	61	786.36	4016	1370	66	786.11
16	2076	264	45	795.09	2071	311	42	795.07
17	3433	1293	58	861.08	3458	1220	56	860.37
18	4919	2714	75	911.74	5380	2903	76	911.22
19	5445	3227	80	934.40	5391	3396	79	934.09
20	2319	487	48	965.31	2346	525	45	964.51
21	3086	1066	55	969.77	3418	1420	58	969.01
22	18415	15986	148	1120.99	18016	15276	142	1120.34
23	7615	5344	99	1238.92	7401	5270	93	1238.19
24	8325	6311	103	1461.73	8256	6383	99	1460.78
25	2987	1264	62	1510.19	3017	1597	61	1509.18
26	15201	13229	138	1765.65	15107	13470	131	1764.20
27	1337	707	44	2119.74	1295	759	40	2117.72
28	4329	3565	76	2205.62	4432	3776	75	2203.11
29	1393	754	45	2449.37	1313	785	42	2446.28
30	6406	5648	88	2616.36	5840	5520	82	2612.81

## ANEXO 4 - Parâmetros para Distribuição de Student

**Tabela 30** – Parâmetros para a distribuição de Student para os respectivos graus de liberdade

Pontos de probabilidade da distribuição  $t$  com  $v$  graus de liberdade.



$v$	Área de probabilidade									
	0,4	0,25	0,1	0,05	0,025	0,01	0,005	0,0025	0,001	0,0005
1	0,325	1,000	3,078	6,314	12,708	31,821	63,657	127,32	318,31	636,62
2	0,289	0,816	1,888	2,920	4,303	6,965	9,925	14,089	22,326	31,598
3	0,277	0,785	1,838	2,853	3,182	4,541	5,841	7,453	10,213	12,924
4	0,271	0,741	1,533	2,132	2,776	3,747	4,604	5,598	7,173	8,610
5	0,267	0,727	1,479	2,015	2,571	3,365	4,032	4,773	5,893	6,899
6	0,265	0,718	1,440	1,943	2,447	3,143	3,707	4,317	5,208	5,959
7	0,263	0,711	1,415	1,895	2,365	2,998	3,449	4,029	4,785	5,408
8	0,262	0,706	1,397	1,860	2,306	2,896	3,365	3,833	4,501	5,041
9	0,261	0,703	1,383	1,833	2,262	2,821	3,250	3,690	4,297	4,781
10	0,260	0,700	1,372	1,812	2,228	2,784	3,169	3,581	4,144	4,587
11	0,260	0,697	1,363	1,796	2,201	2,718	3,105	3,497	4,025	4,437
12	0,259	0,695	1,356	1,782	2,179	2,681	3,055	3,428	3,930	4,318
13	0,259	0,694	1,350	1,771	2,160	2,650	3,012	3,372	3,852	4,221
14	0,258	0,692	1,345	1,761	2,145	2,624	2,977	3,326	3,787	4,140
15	0,258	0,691	1,341	1,753	2,131	2,602	2,947	3,286	3,733	4,073
16	0,258	0,690	1,337	1,746	2,120	2,583	2,921	3,252	3,686	4,015
17	0,257	0,689	1,333	1,740	2,110	2,567	2,898	3,222	3,646	3,965
18	0,257	0,688	1,330	1,734	2,101	2,552	2,878	3,197	3,610	3,922
19	0,257	0,688	1,328	1,729	2,093	2,539	2,861	3,174	3,579	3,883
20	0,257	0,687	1,326	1,725	2,086	2,528	2,845	3,153	3,552	3,850
21	0,257	0,686	1,323	1,721	2,080	2,518	2,831	3,135	3,527	3,819
22	0,256	0,686	1,321	1,717	2,074	2,508	2,819	3,119	3,505	3,792
23	0,256	0,685	1,319	1,714	2,069	2,500	2,807	3,104	3,485	3,767
24	0,256	0,685	1,318	1,711	2,064	2,492	2,797	3,091	3,467	3,745
25	0,256	0,684	1,316	1,708	2,059	2,485	2,787	3,078	3,450	3,725
26	0,256	0,684	1,315	1,706	2,056	2,479	2,779	3,067	3,435	3,707
27	0,256	0,684	1,314	1,703	2,053	2,473	2,771	3,057	3,421	3,690
28	0,256	0,683	1,313	1,701	2,048	2,467	2,763	3,047	3,408	3,674
29	0,256	0,683	1,311	1,699	2,045	2,462	2,756	3,038	3,396	3,659
30	0,256	0,683	1,310	1,697	2,042	2,457	2,750	3,030	3,385	3,646
40	0,255	0,681	1,303	1,684	2,021	2,423	2,704	2,971	3,307	3,551
50	0,254	0,679	1,296	1,671	2,000	2,390	2,660	2,915	3,232	3,460
120	0,254	0,677	1,289	1,658	1,880	2,358	2,617	2,860	3,169	3,373
$\infty$	0,253	0,674	1,282	1,645	1,960	2,326	2,576	2,807	3,090	3,291

Fonte: Box, G. E. P.; Hunter, W. G., e Hunter, J. S., *Statistics for experimenters. An introduction to design, data analysis and model building*. Nova York, Wiley, 1978. Pearson, E. S. e Hartley, H. O. (eds.), *Biometrika tables for statisticians*, vol. I, Cambridge University Press (1958). Fisher, R. A. e Yates, F., *Statistical tables for Biological, Agricultural and Medical Research*, Longman Group Ltd, (1974) - Tabela III. Reproduzida com autorização da John Wiley & Sons, Inc; Biometrika Trustees e Longman Group UK Ltd.