



UNIVERSIDADE  
ESTADUAL DE LONDRINA

---

FÁBIO LUIZ MELQUIADES

MEDIDA DE TRAÇOS RADIOATIVOS EM AMOSTRAS DE  
LEITE EM PÓ DA REGIÃO DE LONDRINA - PR

---

Londrina - PR  
2000

**FÁBIO LUIZ MELQUIADES**

**MEDIDA DE TRAÇOS RADIOATIVOS EM AMOSTRAS DE  
LEITE EM PÓ DA REGIÃO DE LONDRINA - PR**

Dissertação 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 R. Appoloni

**Londrina - PR  
2000**

**COMISSÃO EXAMINADORA**

---

**Carlos Roberto Appoloni**

---

**Elisabete A. de Nadai Fernandes**

---

**Marcos de Castro Falleiros**

**Londrina, \_\_\_\_ de \_\_\_\_\_ de 2000**

## **DEDICO**

À Mãe, Rainha e Vencedora Três  
Veze Admirável de Schoenstatt que  
me acompanha e capacita em todos os  
momentos, conduzindo minha vida.

## AGRADECIMENTOS

Agradeço ao Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni pela amizade e companheirismo, pela excelente orientação e ensinamentos transmitidos.

À minha família pelo incentivo e compreensão em todos os momentos.

Aos colegas de mestrado Walmir, Sidney e João Paulo e ao técnico Fábio Lopes pelo companheirismo e amizade.

Ao Prof. Dr. Otávio Portezan Filho pela amizade e participação na banca examinadora deste trabalho.

À Prof. Tiemi Matsuo, do Departamento de Matemática Aplicada, pelo suporte nas análises estatísticas realizadas no trabalho.

Aos colegas do Grupo de Física Nuclear Aplicada e do Departamento de Física da UEL, pelo convívio e amizade.

Aos professores e funcionários do Departamento de Física pela hospitalidade, amizade e conhecimento transmitido.

Às seguintes instituições, pela formação, oportunidade de realização do curso, infra-estrutura e facilidades oferecidas na execução deste trabalho: UEL, Departamento de Física e CAPES.

## LISTA DE TABELAS

<i>Tabela 1 - Alcance, energia, meia-vida e constante de desintegração de alguns emissores alfa (extraída de KAPLAN, 1963).....</i>	<i>5</i>
<i>Tabela 2 - Valores teóricos aproximados da vida média para o decaimento gama (extraída de KAPLAN,1963).....</i>	<i>15</i>
<i>Tabela 3 - Produtos iniciais e finais das séries radioativas (extraída de BURCHAM, 1974) ...</i>	<i>16</i>
<i>Tabela 4 - Lista dos membros da cadeia do Urânio, com o modo de desintegração, a meia-vida, a constante de desintegração e a energia da partícula emitida (extraída de KAPLAN, 1963) .....</i>	<i>17</i>
<i>Tabela 5 - Lista dos membros da cadeia do Actínio, com o modo de desintegração, a meia-vida, a constante de desintegração e a energia da partícula emitida (extraída de KAPLAN, 1963) .....</i>	<i>18</i>
<i>Tabela 6 - Lista dos membros da cadeia do Tório, com o modo de desintegração, a meia-vida, a constante de desintegração e a energia da partícula emitida (extraída de KAPLAN, 1963) .....</i>	<i>19</i>
<i>Tabela 7 - Materiais radioativos naturais não incluídos nas séries radioativas (extraída de BURCHAM, 1974).....</i>	<i>22</i>
<i>Tabela 8 - Raios X e raios gama encontrados num espectro de fundo registrado por 24 dias, com suas respectivas energias, origem e taxa de contagem (extraída de MOUCHEL, 1992).....</i>	<i>25</i>
<i>Tabela 9 - Limites de radioatividade para leite em pó e outros produtos (extraída de CNEN,1988).....</i>	<i>34</i>
<i>Tabela 10 - Contribuição do FWHM na resolução em energia do detector de GeHP em valores absolutos e percentuais.....</i>	<i>47</i>
<i>Tabela 11 - Valores para medidas de <sup>40</sup>K em leite em pó na Venezuela e materiais de referência certificados (extraída de LaBRECQUE, 1992).....</i>	<i>59</i>
<i>Tabela 12 - Valores para o número de amostras necessárias para representar um certo lote de leite em pó com 95% de confiabilidade.....</i>	<i>60</i>
<i>Tabela 13 - Características das amostras de leite em pó preparadas.....</i>	<i>62</i>
<i>Tabela 14 - Atividade dos radionuclídeos encontrados nas amostras calibradas para data de referência de 01/03/99 .....</i>	<i>64</i>
<i>Tabela 15 - Valores medidos da eficiência de detecção para a linha de 1460,8 keV do <sup>40</sup>K .....</i>	<i>72</i>
<i>Tabela 16 - Fator de auto-absorção para linha de 1460,8 keV do <sup>40</sup>K. ....</i>	<i>81</i>

<i>Tabela 17 - Valores médios do coeficiente de calibração <math>\alpha</math>.....</i>	<i>81</i>
<i>Tabela 18 - Resultados das atividades do leite integral Cativa para o <math>^{40}\text{K}</math> (1460,8 keV) .....</i>	<i>82</i>
<i>Tabela 19 - Resultados das atividades do leite integral Cativa para o <math>^{137}\text{Cs}</math> (661,22 keV) .....</i>	<i>83</i>
<i>Tabela 20 - Resultados das atividades do leite integral Cativa para o <math>^{208}\text{Tl}</math> (2614,47 keV) .....</i>	<i>84</i>
<i>Tabela 21 - Resultados das atividades do leite integral Polly para o <math>^{40}\text{K}</math> (1460,8 keV).....</i>	<i>85</i>
<i>Tabela 22 - Resultados das atividades do leite integral Polly para o <math>^{137}\text{Cs}</math> (661,22 keV).....</i>	<i>86</i>
<i>Tabela 23 - Resultados das atividades do leite integral Polly para o <math>^{208}\text{Tl}</math> (2614,47 keV).....</i>	<i>87</i>
<i>Tabela 24a - Resultados estatísticos das atividades das amostras do leite em pó Cativa. ....</i>	<i>89</i>
<i>Tabela 24b - Resultados Estatísticos das Atividades dos Leites em Pó Cativa em massa seca. .....</i>	<i>89</i>
<i>Tabela 25a - Resultados estatísticos das atividades das amostras do leite em pó Polly. ....</i>	<i>90</i>
<i>Tabela 25b - Resultados Estatísticos das Atividades dos Leites em Pó Polly em massa seca. ..</i>	<i>90</i>
<i>Tabela 26 - Resultados das medidas de leite contaminado.....</i>	<i>94</i>
<i>Tabela 27 - Resultados das atividades de <math>^{40}\text{K}</math> e <math>^{137}\text{Cs}</math> obtidos por espectrometria gama em amostras de leite em pó.....</i>	<i>97</i>
<i>Tabela 28 - Resultados de medidas de <math>^{137}\text{Cs}</math> em leite in natura.....</i>	<i>99</i>
<i>Tabela 29 - Resultados em Bq/L de <math>^{137}\text{Cs}</math> para comparar com a Tabela 27.....</i>	<i>99</i>
<i>Tabela 30 - Atividade de radionuclídeos naturais em leite.....</i>	<i>100</i>
<i>Tabela 31 - Valores de atividades de <math>^{137}\text{Cs}</math> e <math>^{40}\text{K}</math> em solos e na vegetação em duas regiões da Alemanha (extraída de ALBERTS et al., 1998) .....</i>	<i>101</i>

## LISTA DE FIGURAS

<i>Figura 1 - Energia potencial relativa da partícula alfa (extraída de KRANE, 1955).....</i>	<i>5</i>
<i>Figura 2 - Energia deixada no decaimento alfa para várias seqüências isotópicas de núcleos pesados (extraída de KRANE, 1955).....</i>	<i>6</i>
<i>Figura 3 - Espectro de partículas beta do <sup>38</sup>Cl (extraída de LANGER, 1950).....</i>	<i>10</i>
<i>Figura 4 - Esquema de decaimento para alguns emissores beta (extraída de KAPLAN, 1963) ..</i>	<i>11</i>
<i>Figura 5 - Esquema de decaimento dos raios gama .....</i>	<i>12</i>
<i>Figura 6 - Variação no número atômico e no número de massa para a cadeia do Urânio segundo a lei de deslocamento de Soddy (extraída de KAPLAN, 1963).....</i>	<i>20</i>
<i>Figura 7 - Variação no número atômico e no número de massa para a cadeia do Actínio segundo a lei de deslocamento de Soddy (extraída de KAPLAN, 1963).....</i>	<i>21</i>
<i>Figura 8 - Variação no número atômico e no número de massa para a cadeia do Tório segundo a lei de deslocamento de Soddy (extraída de KAPLAN, 1963).....</i>	<i>21</i>
<i>Figura 9 - Esquema de decaimento do <sup>40</sup>K.....</i>	<i>22</i>
<i>Figura 10 - Absorção da radiação cósmica ao nível do mar em chumbo. Observa-se a existência das componentes “suave” e “dura” (extraída de AUGER et al. 1936) ..</i>	<i>24</i>
<i>Figura 11 - Radionuclídeos naturais e artificiais conhecidos (extraída de KAPLAN, 1963) ....</i>	<i>27</i>
<i>Figura 12 - Deposição global de <sup>137</sup>Cs devido ao “fallout” radioativo.....</i>	<i>30</i>
<i>Figura 13 - Deposição global de <sup>90</sup>Sr do “fallout” radioativo no hemisfério norte e no hemisfério sul. O <sup>137</sup>Cs é igual a 1,45 vezes o <sup>90</sup>Sr em formação (extraída de RITCHIE, 1990).....</i>	<i>31</i>
<i>Figura 14 - Diagrama do ciclo do <sup>137</sup>Cs na natureza (extraída de RITCHIE, 1990).....</i>	<i>32</i>
<i>Figura 15 - Caminhos dos radionuclídeos no ambiente até a ingestão pelo homem. (extraída de RADIATION, 1985).....</i>	<i>33</i>
<i>Figura 16 - Esquema de blocos para os componentes da eletrônica utilizada.....</i>	<i>43</i>
<i>Figura 17 - Espectro comparativo entre o pico de 1408,12 keV do <sup>154</sup>Eu e o pico com o pulsador.....</i>	<i>46</i>
<i>Figura 18 - Espectro ilustrativo das várias medidas para definição da seqüência de blindagem a ser utilizada (tempo de cada medida igual a 8h).....</i>	<i>51</i>
<i>Figura 19 - Espectro de fundo sem blindagem (tempo de cada medida igual a 48h).....</i>	<i>52</i>

<i>Figura 20 - Espectro de fundo com blindagem de chumbo, ferro e alumínio (tempo de cada medida igual a 48h).....</i>	<i>52</i>
<i>Figura 21 - Esquema com as dimensões de um béquer Marinelli de 2,1 litros .....</i>	<i>54</i>
<i>Figura 22 - Espectro comparativo da medida de teste da geometria da amostra entre o béquer Marinelli totalmente preenchido e o béquer Marinelli preenchido até <math>\frac{3}{4}</math> da altura (tempo de cada medida igual a 48h).....</i>	<i>55</i>
<i>Figura 23 - Espectro comparativo da medida de teste da geometria da amostra entre o pote de 300 mL e o pote de 350 mL, preenchidos totalmente (tempo de cada medida igual a 48h) .....</i>	<i>55</i>
<i>Figura 24 - Esquema da geometria do sistema de medidas.....</i>	<i>56</i>
<i>Figura 25 - Dependência da eficiência de contagem com relação à densidade (extraída de TASKAEVA,1996).....</i>	<i>73</i>
<i>Figura 26 - Dependência da eficiência de contagem com a densidade, obtida com os dados do pico de 1460,8 keV do <math>^{40}\text{K}</math>. .....</i>	<i>74</i>
<i>Figura 27 - Variação da auto-absorção com a densidade para a linha de 1460,8 keV do <math>^{40}\text{K}</math> nos leites Cativa e Polly.....</i>	<i>75</i>
<i>Figura 28 - Geometria de medida da eficiência com a fonte de <math>^{152}\text{Eu}</math> .....</i>	<i>76</i>
<i>Figura 29 - Gráfico de eficiência intrínseca versus energia para a fonte de <math>^{152}\text{Eu}</math>.....</i>	<i>78</i>
<i>Figura 30 - Gráfico que mostra a normalidade entre as 18 medidas do leite Cativa para o <math>^{40}\text{K}</math>.....</i>	<i>91</i>
<i>Figura 31 - Gráfico que mostra a normalidade entre as 18 medidas do leite Polly para o <math>^{40}\text{K}</math> .....</i>	<i>92</i>
<i>Figura 32 - Gráfico de correlação entre os desvios padrões e as médias para as 6 amostras de leite Cativa para o <math>^{40}\text{K}</math> .....</i>	<i>93</i>
<i>Figura 33 - Gráfico de correlação entre os desvios padrões e as médias para as 6 amostras de leite Polly para o <math>^{40}\text{K}</math>.....</i>	<i>93</i>
<i>Figura 34 - Espectro comparativo entre as amostras de leite contaminado e as marcas Cativa e Polly. ....</i>	<i>95</i>

## SUMÁRIO

<b>1. INTRODUÇÃO.....</b>	<b>1</b>
<b>2. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA .....</b>	<b>3</b>
<b>2.1. Processos de decaimento.....</b>	<b>3</b>
2.1.1 Decaimento alfa ( $\alpha$ ).....	3
2.1.2 Decaimento beta ( $\beta$ ).....	7
2.1.3 Decaimento gama ( $\gamma$ ).....	11
<b>2.2. Radioatividade natural.....</b>	<b>16</b>
2.2.1 Radiação cósmica .....	23
<b>2.3. Radioatividade artificial .....</b>	<b>26</b>
2.3.1 “Fallout” radioativo .....	28
<b>2.4 Doses máximas permissíveis de radioatividade em alimentos.....</b>	<b>33</b>
<b>3. REVISÃO DA LITERATURA.....</b>	<b>35</b>
<b>3.1 Aspectos da técnica.....</b>	<b>35</b>
<b>3.2 Medida de radioatividade em amostras ambientais e alimentares .....</b>	<b>36</b>
<b>3.3 Medida de radioatividade em amostras de leite em pó.....</b>	<b>38</b>
<b>4. MATERIAIS E MÉTODOS .....</b>	<b>41</b>
<b>4.1 Sistema de detecção e geometria.....</b>	<b>41</b>
4.1.1 Equipamentos do laboratório.....	41
4.1.2 Ajustes na eletrônica nuclear de aquisição de dados .....	43
4.1.3 Detector de germânio hiperpuro – GeHP.....	44
4.1.3.1 Resolução em energia.....	45
4.1.3.2. Eficiência de detecção .....	48
4.1.3.3 Blindagem do sistema de detecção.....	49
4.1.3.4 Limite mínimo de detecção e atividade mínima detectável.....	53
4.1.4 Geometria do sistema .....	53
<b>4.2 Caracterização, coleta e preparação das amostras .....</b>	<b>57</b>
4.2.1 Origem das amostras.....	57
4.2.2 Dimensionamento das amostras .....	57
4.2.3 Preparação das amostras .....	60
<b>4.3 Amostras calibradas.....</b>	<b>62</b>
4.3.1 Preparação das amostras calibradas .....	62
4.3.2 Equação de calibração .....	65
<b>4.4 Amostras com densidade variável.....</b>	<b>66</b>
4.4.1 Processo de preparação das amostras com densidade variável .....	66
<b>4.5 Amostras contaminadas .....</b>	<b>67</b>
4.5.1 Preparação das amostras de leite em pó contaminadas.....	68
<b>5. METODOLOGIA DE ANÁLISE.....</b>	<b>69</b>
<b>5.1. Análise das amostras.....</b>	<b>69</b>
5.1.1 Espectrometria gama .....	69
<b>5.2 Softwares utilizados.....</b>	<b>70</b>
<b>5.3 Metodologia de medida da eficiência de detecção .....</b>	<b>71</b>

5.3.1 Cálculo da eficiência de detecção utilizando uma fonte de $^{152}\text{Eu}$ .....	75
5.3.2 Cálculo da eficiência de detecção do $^{208}\text{Tl}$ .....	78
<b>6. RESULTADOS OBTIDOS E DISCUSSÃO .....</b>	<b>80</b>
<b>6.1 Análise estatística dos resultados.....</b>	<b>88</b>
<b>6.2 Resultados para as marcas de leite contaminado .....</b>	<b>94</b>
<b>6.3. Comparação com resultados da literatura.....</b>	<b>95</b>
<b>7. CONCLUSÕES.....</b>	<b>102</b>
<b>REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....</b>	<b>104</b>
<b>ANEXO A.....</b>	<b>107</b>
<b>A1. Protocolo de preparação de amostra de leite em pó.....</b>	<b>108</b>
<b>A2. Protocolo de preparação de amostras para teste de geometria .....</b>	<b>110</b>
<b>A3. Protocolo de preparação de amostras calibradas.....</b>	<b>111</b>
<b>A4. Protocolo de preparação de amostras com densidade variável (compactadas).....</b>	<b>119</b>
<b>A5. Protocolo de preparação de amostras com leite importado contaminado .....</b>	<b>124</b>
<b>A6. Seqüência de medidas .....</b>	<b>126</b>

## RESUMO

Este trabalho consiste na medida de traços radioativos em leite em pó, através da espectrometria gama de alta resolução, utilizando um detector de GeHP de 10% de eficiência relativa, acoplado à eletrônica nuclear de medidas e a uma placa multicanal de 8192 canais. Antes de iniciar as medidas, foram realizados alguns testes. O primeiro deles para definir a blindagem a ser utilizada, fazendo várias medidas com diferentes blindagens de acordo com os materiais disponíveis, optando finalmente por uma blindagem com tijolos de chumbo de 10 cm, placas de ferro de 4 mm e de alumínio de 2 mm. Em seguida foram testadas 4 geometrias diferentes de porta amostra, sendo que o béquer Marinelli de 2,1 litros totalmente preenchido é o que forneceu a melhor razão pico/fundo. Ainda foi realizada uma inferência estatística para determinar a amostragem necessária para representar cada um dos lotes de leite a serem medidos, estabelecendo-se um número de 6 amostras, para uma confiabilidade de 95%. Foram analisadas duas marcas de leite, Leite em Pó Integral Cativa e Leite em Pó Integral Polly. As amostras foram devidamente acomodadas no béquer Marinelli de 2,1 L, lacradas e guardadas por 40 dias para atingir o equilíbrio secular. A duração de cada medida foi dois dias. Foi possível identificar os radionuclídeos  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{232}\text{Th}$  (a partir do  $^{208}\text{Tl}$ ), cujas atividades foram calculadas de acordo com as normas da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1989). A eficiência do detector foi medida utilizando amostras calibradas, preparadas a partir dos padrões certificados IAEA-326 e IAEA-375. Foram realizadas correções de auto-absorção, com base em medidas de amostras com diferentes densidades. Os resultados obtidos para o leite em pó Cativa foram:  $464 \pm 12$  Bq/kg para o  $^{40}\text{K}$ ,  $3,46 \pm 1,05$  e  $0,46 \pm 0,16$  Bq/kg para as atividades mínimas detectáveis do  $^{137}\text{Cs}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , respectivamente. Para o leite Polly encontraram-se:  $452 \pm 10$  Bq/kg para o  $^{40}\text{K}$ ,  $3,19 \pm 0,63$  e  $0,32 \pm 0,12$  Bq/kg para as atividades mínimas detectáveis do  $^{137}\text{Cs}$  e do  $^{232}\text{Th}$ , respectivamente. As análises estatísticas realizadas comprovaram a repetitividade das medidas, através do teste de comparação de médias de Tukey. Uma análise de correlação entre o desvio padrão e a média mostrou a ausência de erros sistemáticos significativos. Comparando-se os resultados obtidos com outros trabalhos da literatura, comprovou-se que os valores das atividades encontradas estão dentro dos níveis normais de radioatividade para este produto e bem abaixo dos níveis máximos permissíveis estabelecidos pela CNEN, ou seja, as marcas de leite analisadas podem ser consumidas normalmente. Por outro lado, a metodologia implementada apresentou um bom desempenho, face às condições experimentais disponíveis.

## ABSTRACT

This work deals with the measurement of radioactive lines in powdered milk, with high resolution gamma spectrometry, using a HPGe detector with relative efficiency of 10%, coupled to the electronic nuclear chain and a multichannel card of 8192 channels. Some tests were realized before beginning the measurements. The first of them was to define the shield to be used, making several measures with different shields according to the available materials, opting finally for a shield composed of bricks of lead (10 cm thickness), plates of iron (4 mm thickness) and of aluminum (2 mm thickness). Four different geometries for the samples recipients were tested, and the Marinelli beaker of 2,1 liters totally filled was the one which supplied the best peak/background ratio. A statistical inference was also realized to determine the sampling that represents each one of the lots of milk to be measured, resulting in a number of 6 samples, for a confidence level of 95%. Two different kinds of powdered milk produced at Londrina were analyzed, Integral Powdered Milk Cativa and Integral Powdered Milk Polly. The samples were properly put in the Marinelli beaker of 2,1 L, sealed and kept for 40 days to reach the secular equilibrium. The counting time for each measurement was two days. It was possible to identify the radionuclides  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{232}\text{Th}$  (from  $^{208}\text{Tl}$ ), whose activities were calculated according to the International Atomic Energy Agency norms (IAEA, 1989). The detector efficiency was measured using calibrated samples, prepared with the certified reference materials IAEA-326 and IAEA-375. Corrections for self-absorption were accomplished, based on measures of samples with different densities. The results obtained for the powdered milk Cativa were:  $464 \pm 12$  Bq/kg for  $^{40}\text{K}$ ,  $3,46 \pm 1,05$  and  $0,46 \pm 0,16$  Bq/kg for the minimum detectable activities of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{232}\text{Th}$ , respectively. For the milk Polly, the results were:  $452 \pm 10$  Bq/kg for  $^{40}\text{K}$ ,  $3,19 \pm 0,63$  and  $0,32 \pm 0,12$  Bq/kg for the minimum detectable activities of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{232}\text{Th}$ , respectively. The statistical analyses performed checked the measurements repeatability by means of the Tukey's average comparison test. A correlation analysis between standard deviations and the mean showed the absence of significant systematic deviation. Comparing the results obtained with literature, it was demonstrated that the values of the activities found are within the normal levels of radioactivity for this kind of product and below the maximum permissible levels established by CNEN, that is, the analyzed milk can be normally consumed. On the other hand, the implemented methodology presented a good performance, faced to the available experimental conditions.

# 1. INTRODUÇÃO

A medida de traços radioativos no ambiente e em alimentos é de fundamental importância para monitoração dos níveis de radiação a que o homem está exposto direta ou indiretamente, pois a contaminação por radionuclídeos não tem fronteiras.

Devido às dezenas de testes de armas nucleares e vários acidentes com reatores nucleares, diversos elementos radioativos artificiais foram introduzidos na biosfera, além ainda da existência dos radionuclídeos naturais. Outro fato importante é que no caso de um acidente nuclear em qualquer parte do mundo, através da importação de alimentos contaminados, a saúde das pessoas de qualquer região pode ser afetada indiretamente. Isto aconteceu no Brasil, inclusive no Paraná, na época do acidente de Chernobyl, quando foi importado leite em pó contaminado.

A principal fonte de radionuclídeos na dieta alimentar constitui-se de leite, carne e outros produtos consumidos mais freqüentemente. Dentre eles, o leite é o mais estudado por ser constituinte básico da dieta alimentar de bebês e crianças, que são mais sensíveis à radiação por possuírem o organismo em fase de crescimento.

Desta forma, o objetivo deste trabalho é desenvolver e implementar a técnica de medida de traços radioativos em alimentos, fazendo uso da espectrometria gama de alta resolução, utilizando um detector de germânio híperpuro (GeHP). Mais especificamente, tem-se o intuito de identificar e quantificar os radionuclídeos presentes em amostras de leite em pó fabricadas na região de Londrina - PR.

Com exceção das medidas realizadas em 1987 pelo Laboratório de Física Nuclear Aplicada da Universidade Estadual de Londrina em marcas de leite local e importado logo após o acidente de Chernobyl (FOLHA DE LONDRINA, 1987), até o momento não haviam sido realizadas medidas de traços radioativos em marcas de leite produzidas e comercializadas no Paraná.

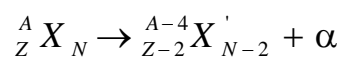
## 2. FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

### 2.1. Processos de decaimento

#### 2.1.1 Decaimento alfa ( $\alpha$ )

O processo da emissão  $\alpha$  se dá através do tunelamento pelo potencial coulombiano do núcleo. Ele torna-se importante para núcleos pesados devido à força de Coulomb aumentar com  $Z^2$ .

O decaimento  $\alpha$  é um processo espontâneo originado da diminuição da massa do núcleo em transmutação. A emissão espontânea de uma partícula  $\alpha$  pode ser representada pela seguinte equação:



Equação 1

A partícula  $\alpha$  é o núcleo de  ${}^4\text{He}$ , contendo dois prótons e dois nêutrons. Para uma maior compreensão deste processo deve-se estudar a conservação em energia e momento angular. As considerações sobre momento angular serão discutidas no item 2.1.3 a seguir.

Considerando a conservação em energia, assume-se que o núcleo inicial  $X$  esteja em repouso com energia igual a  $m_X c^2$ . Os estados finais consistem de  $X'$  e  $\alpha$  que estarão em movimento para conservar o momento linear. Assim a conservação de energia fica:

$$m_X c^2 = m_{X'} c^2 + T_{X'} + m_\alpha c^2 + T_\alpha \quad \text{Equação 2}$$

onde os  $T$ 's representam as respectivas energias cinéticas. Isolando os  $T$ 's:

$$T_{X'} + T_\alpha = (m_X - m_{X'} - m_\alpha) c^2 \quad \text{Equação 3}$$

$$Q = (m_X - m_{X'} - m_\alpha) c^2 \quad \text{Equação 4}$$

onde  $Q$  é a energia de desintegração alfa deixada no decaimento, ou seja, o decaimento será espontâneo se  $Q > 0$ .

A Figura 1 mostra a energia potencial entre a partícula alfa e o núcleo residual, ou seja, as interações entre um núcleo radioativo e uma partícula alfa dentro e fora do núcleo estão representadas.

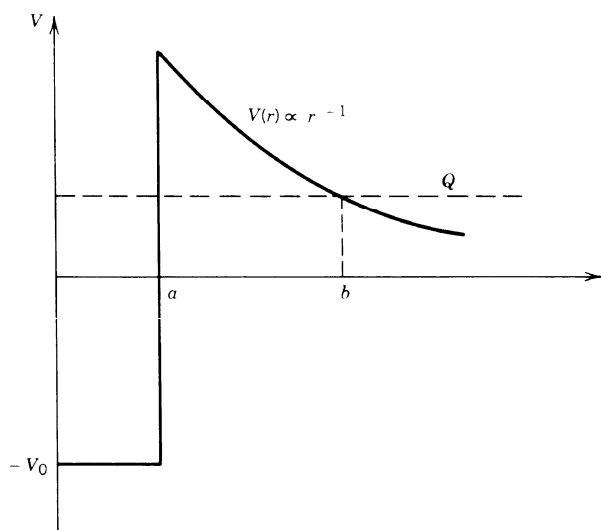


Figura 1 - Energia potencial relativa da partícula alfa (extraída de KRANE, 1955)

Quando o alcance, energia, meia-vida e constante de desintegração dos emissores  $\alpha$  são comparados, algumas características são observadas, conforme a Tabela 1. Nota-se que um fator de 2 ou 3 na energia corresponde a um fator de  $10^{24}$  na meia-vida e na constante de desintegração.

Tabela 1 - Alcance, energia, meia-vida e constante de desintegração de alguns emissores alfa (extraída de KAPLAN, 1963)

Nuclídeo	Alcance médio, cm de ar padrão	Energia de desintegração alfa, MeV	Meia-vida	Constante de desintegração, $s^{-1}$
$^{232}\text{Th}$	2,49	4,06	$1,39 \times 10^{10}$ a	$1,58 \times 10^{-18}$
$^{226}\text{Ra}$ (Ra)	3,30	4,86	$1,62 \times 10^3$ a	$1,36 \times 10^{-11}$
$^{228}\text{Th}$ (RdTh)	3,98	5,52	1,9 a	$1,16 \times 10^{-8}$
$^{222}\text{Em}$ (Rn)	4,05	5,59	3,83 d	$2,10 \times 10^{-6}$
$^{218}\text{Po}$ (RaA)	4,66	6,11	3,05 min	$3,78 \times 10^{-3}$
$^{216}\text{Po}$ (ThA)	5,64	6,90	0,16 s	4,33
$^{214}\text{Po}$ (RaC')	6,91	7,83	$1,64 \times 10^{-4}$ s	$4,23 \times 10^3$
$^{212}\text{Po}$ (ThC')	8,57	8,95	$3,0 \times 10^{-7}$ s	$2,31 \times 10^6$

No decaimento alfa, a energia de desintegração apresenta uma dependência com o número de massa. Na Figura 2 ressalta-se a relação existente entre a energia de desintegração e os diferentes elementos. Pode-se perceber que quanto maior o número atômico, maior é a energia de desintegração, no entanto, quanto maior for o número de massa, menor é a energia de desintegração, para uma mesma série isotópica.

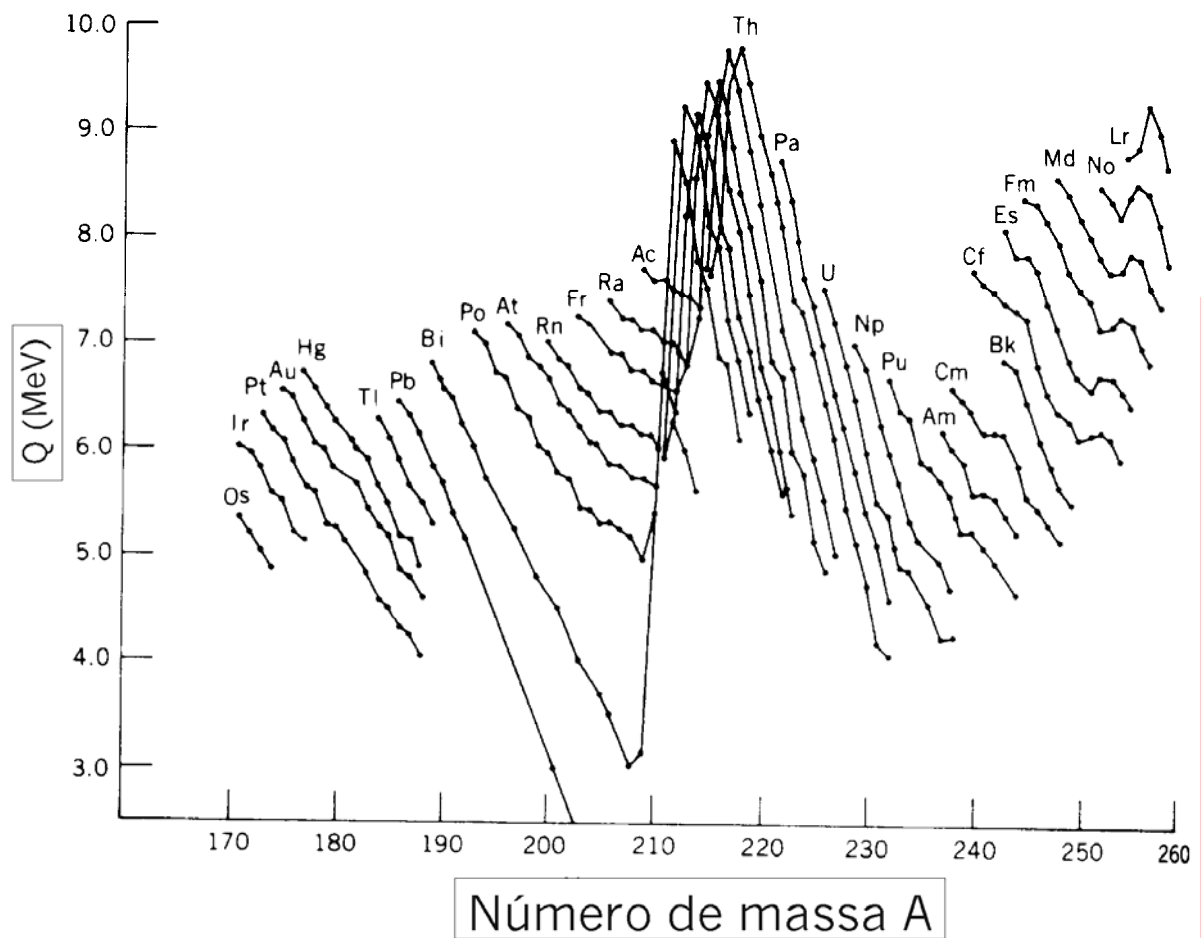


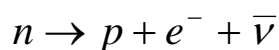
Figura 2 - Energia deixada no decaimento alfa para várias seqüências isotópicas de núcleos pesados (extraída de KRANE, 1955)

### 2.1.2 Decaimento beta ( $\beta$ )

O processo de decaimento  $\beta$  mais básico consiste na conversão de um próton em um nêutron ou de um nêutron em um próton, através da emissão ou absorção de elétrons.

O processo de decaimento envolvendo a emissão de um elétron é denominado decaimento  $\beta^-$ . Envolvendo a emissão de um pósitron, é denominado decaimento  $\beta^+$ . O processo inverso ao decaimento  $\beta^-$ , a absorção de um elétron pelo núcleo, é o processo de captura eletrônica no decaimento beta (EC).

A distribuição de energia do decaimento beta de elétrons forneceu resultados experimentais confusos no início das pesquisas em radioatividade. Notou-se que no decaimento  $\beta$  a conservação da energia e momento não eram compatíveis com o problema de dois corpos, pois além do espectro de linha monoenergética dos elétrons de conversão, existia o espectro contínuo dos elétrons de desintegração. Assim, como o decaimento é uma transição entre dois estados de energia definida, isto é devido aos elétrons emitidos não terem sempre a mesma energia. Para solucionar este problema, foi postulado por Pauli a existência de uma outra partícula que acompanha o elétron no decaimento beta e que carrega uma quantidade de energia igual à diferença entre a energia do elétron emitido e a energia máxima do espectro beta. Essa partícula foi chamada neutrino ( $\nu$ ). O decaimento  $\beta^-$  é o processo no qual um nêutron decai em um próton mais um elétron (partícula  $\beta^-$ ) e um antineutrino, que é representado esquematicamente por:



Equação 5

Neste caso, a energia de desintegração beta  $Q$ , é definida como a diferença entre as energias das massas nucleares inicial e final.

$$Q = \left( m_n - m_p - m_e - m_{\bar{\nu}} \right) c^2 \quad \text{Equação 6}$$

e para decaimento de nêutrons em repouso:

$$Q = T_p + T_e + T_{\bar{\nu}} \quad \text{Equação 7}$$

Num processo geral do decaimento  $\beta^-$  de um núcleo  ${}_Z X^A$ , pode-se representar:

$${}_Z X^A \rightarrow {}_{Z+1} Y^A + e^- + \bar{\nu} + Q_{\beta^-} \quad \text{Equação 8}$$

onde  $Q_{\beta^-} = M(Z, A) - M(Z+1, A)$

O decaimento  $\beta^+$  é o processo no qual um próton decai em um nêutron mais um pósitron (partícula  $\beta^+$ ) e um neutrino, representado esquematicamente por :

$$p \rightarrow n + e^+ + \nu \quad \text{Equação 9}$$

que, num processo geral é representado como:

$${}_Z X^A \rightarrow {}_{Z-1} Y^A + e^+ + \nu + Q_{\beta^+} \quad \text{Equação 10}$$

onde  $Q_{\beta^+} = M(Z, A) - M(Z-1, A)$

A captura eletrônica é o processo pelo qual um próton do núcleo captura um elétron da camada K ou L. A captura de um elétron da camada K tem maior probabilidade de ocorrer devido ao fato desta camada estar mais próxima do núcleo, e o processo é chamado captura-K. A vacância na camada K ou na camada L é preenchida por um elétron das camadas mais exteriores com a emissão de raios-X K ou L, característicos do núcleo produto e/ou os elétrons Auger. Este processo é representado esquematicamente como:



onde

$$Q_{EC} = M(Z, A) - M(Z - 1, A) - B(e_K) \quad \text{Equação 12}$$

Como neste processo nenhuma partícula carregada é emitida, ele só pode ser observado por causa da emissão de raios-X do núcleo filho. Na Figura 3 está exemplificado um espectro de decaimento beta.

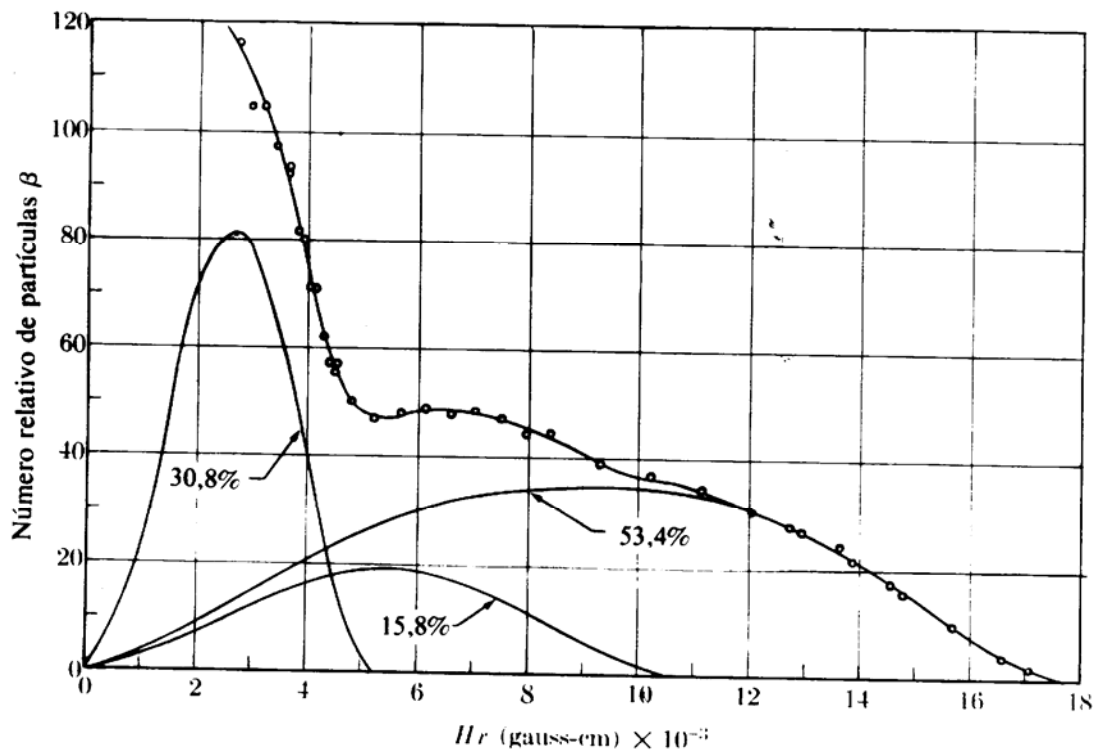


Figura 3 - Espectro de partículas beta do  $^{38}\text{Cl}$  (extraída de LANGER, 1950)

A seguir apresenta-se o exemplo de um esquema de desintegração beta, que fornece informações sobre os níveis de energia dos núcleos produto.

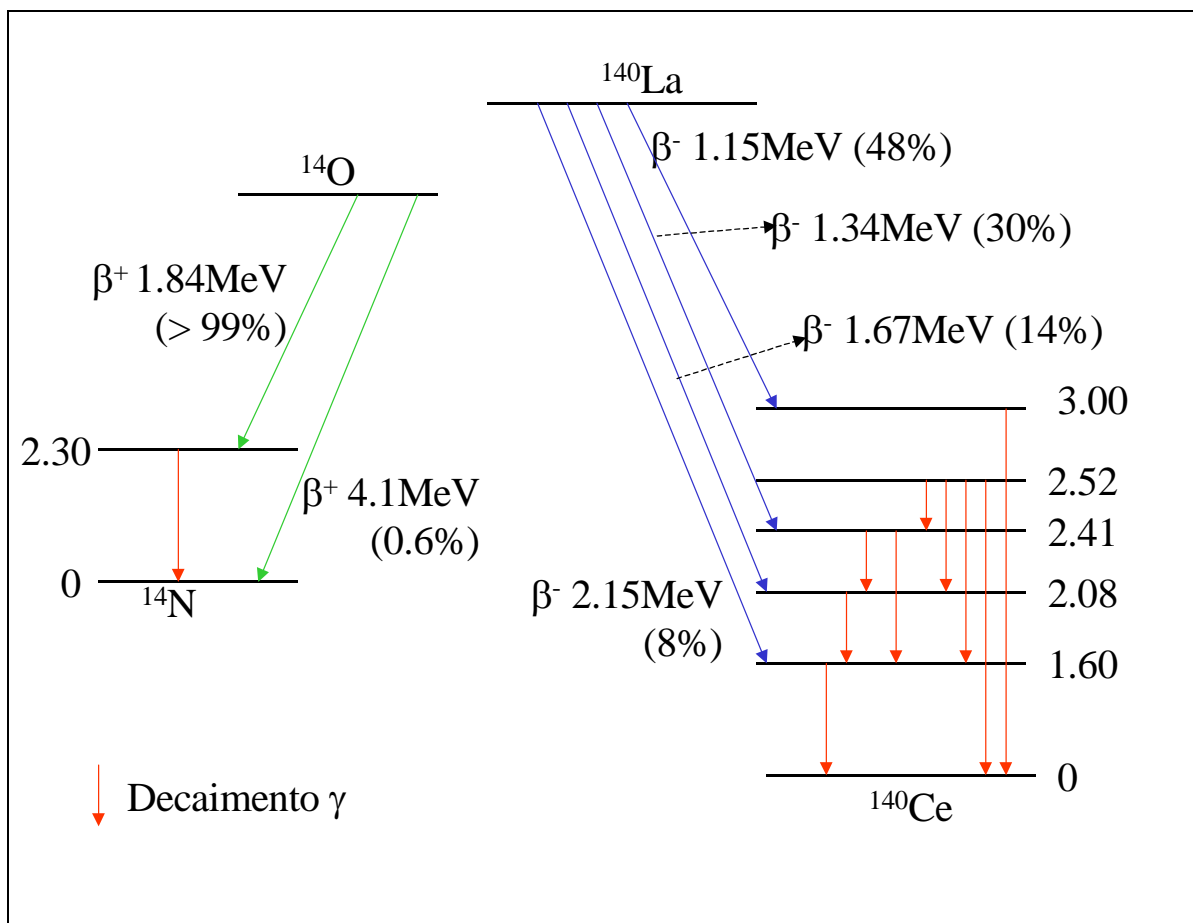


Figura 4 - Esquema de decaimento para alguns emissores beta (extraída de KAPLAN, 1963)

### 2.1.3 Decaimento gama ( $\gamma$ )

A maioria dos decaimentos alfa e beta deixa o núcleo final em um estado excitado. Estes estados excitados decaem rapidamente para o estado fundamental através da emissão de um ou mais raios gama. A radiação gama é, portanto, uma radiação eletromagnética emitida espontaneamente pelos núcleos atômicos quando estes decaem de estados excitados nucleares para estados menos excitados, conforme a Figura 5.

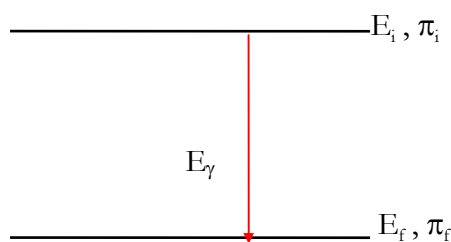


Figura 5 - Esquema de decaimento dos raios gama

O quantum de energia emitido deve estar de acordo com as condições de conservação de momento angular e paridade  $\pi$ .

De modo geral, a radiação eletromagnética do núcleo é separada em tipos distintos, chamados radiação multipolar. Esta separação é feita de acordo com a quantidade de momento angular  $L$  carregado por cada fóton emitido, ou seja, um raio  $\gamma$  com uma certa energia pode ser emitido com diferentes momentos angulares. 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. Os fótons têm somente valores inteiros de momento angular  $L$ , dado pela regra de seleção, que está de acordo com a conservação do momento angular  $|J_i - J_f| \leq L \leq |J_i + J_f|$ , onde  $J_i$  e  $J_f$  são os números quânticos de spins do estado inicial e final, respectivamente, do núcleo emissor. Entretanto, transições gama entre os estados  $J_i = 0$  e  $J_f = 0$  são proibidas como consequência do fato que as ondas eletromagnéticas são de natureza transversal e, portanto, não são emitidos fótons com  $L = 0$ .

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. Citam-se alguns

casos: para uma radiação multipolar com momento angular  $L=1$ , tem-se uma ordem de  $2^1$  que representa um dipolo vibrando. Para uma radiação multipolar com momento angular  $L=2$ , tem-se uma ordem  $2^2$  que representa um quadrupolo vibrando, para  $L=3$  um octopolo e assim por diante. Entretanto, para cada valor de momento angular  $L$  existem duas classes de radiação, a radiação do tipo elétrica (E) e a radiação do tipo magnética (M). Estas radiações diferem pelas suas paridades. A paridade do campo multipolar é, então:

$$\text{para radiação do tipo elétrica} \quad \pi = (-1)^L \quad \text{Equação 13}$$

$$\text{para radiação do tipo magnética} \quad \pi = (-1)^{L+1} \quad \text{Equação 14}$$

Da conservação da paridade para os estados considerados na Figura 5, tem-se:

$$\Delta\pi = \frac{\pi_i}{\pi_f} \quad \text{Equação 15}$$

Se  $\Delta\pi = +1$ , significa que os estados iniciais e finais tem a mesma paridade (paridade par) e se  $\Delta\pi = -1$ , significa que há mudança de paridade (paridade ímpar).

Como exemplo, considerar um estado inicial de momento angular  $J_i=1/2$  e paridade positiva (+) e um estado final de momento angular  $J_f=3/2$  e paridade negativa (-), de forma que se terá para a radiação gama os possíveis momentos angulares  $|1/2 - 3/2| \leq L \leq |1/2 + 3/2|$ , ou seja,  $L=1, 2$  com paridade negativa. As possíveis transições multipolares serão E1 e M2, isto é, uma radiação elétrica tipo dipolo e uma radiação magnética tipo quadrupolo.

Para transições de multipolo elétrico de ordem  $2^L$ , a probabilidade de decaimento, usando o modelo de camadas ou de partícula independente, é dada por (extraído de KAPLAN, 1963):

$$\lambda_{EL} = 2\pi\nu \frac{e^2}{\hbar c} S \left( \frac{R}{\tilde{\lambda}} \right)^{2L} \quad \text{Equação 16}$$

onde  $\lambda_{EL}$  é a constante de desintegração para o decaimento  $\gamma$  com a emissão de radiação EL,  $\nu$  é a frequência da radiação emitida e  $\tilde{\lambda} = \lambda/2\pi$ , onde  $\lambda$  é o comprimento de onda da radiação emitida e  $S$  é uma quantidade que depende de  $L$ , dada por (extraída de KAPLAN, 1963):

$$S = \frac{2(L+1)}{L[1 \times 3 \times 5 \dots (2L+1)]^2} \left( \frac{3}{L+3} \right)^2 \quad \text{Equação 17}$$

Para transições de multipolos magnéticos de ordem  $2^L$ , a probabilidade de decaimento é dada por (extraída de KAPLAN, 1963):

$$\lambda_{ML} = 2\pi\nu \frac{e^2}{\hbar c} (10S) \left( \frac{\hbar}{McR} \right)^2 \left( \frac{R}{\tilde{\lambda}} \right)^{2L} \quad \text{Equação 18}$$

onde  $M$  é a massa do nucleon.

De acordo com as equações (16) e (18), a emissão de radiação de multipolo elétrico é mais provável que a emissão de radiação de multipolo magnético como segue :

$$\frac{\lambda_{EL}}{\lambda_{ML}} = \frac{1}{10} \left( \frac{R}{\hbar/Mc} \right)^2 = 4,4 A^{2/3} \quad \text{Equação 19}$$

onde foi usado que  $\frac{\hbar}{Mc} = 0,211 \times 10^{-13}$  cm e  $R = 1,4A^{1/3} \times 10^{-13}$  cm.

A Tabela 2 mostra valores teóricos aproximados da meia-vida para o decaimento  $\gamma$  para vários valores de momento angular L. Nesta tabela pode-se observar que para raios  $\gamma$  com pequeno momento angular (L=1 ou 2), a probabilidade de decaimento é grande e, portanto, a meia-vida é muito pequena. Para raios  $\gamma$  com momento angular maior que 3, a probabilidade de decaimento torna-se pequena e consequentemente a meia-vida torna-se grande.

Tabela 2 - Valores teóricos aproximados da vida média para o decaimento gama (extraída de KAPLAN,1963)

Tipo de Radiação	Mudança no momento angular, L: em unidade de $\hbar$	Vida média, s		
		Energia dos Raios Gama		
		1,00 MeV	0,20 MeV	0,05 MeV
E1	1	$3 \times 10^{-16}$	$3 \times 10^{-14}$	$2 \times 10^{-12}$
M1	1	$3 \times 10^{-14}$	$3 \times 10^{-12}$	$2 \times 10^{-10}$
E2	2	$7 \times 10^{-12}$	$3 \times 10^{-8}$	$3 \times 10^{-5}$
M2	2	$8 \times 10^{-10}$	$3 \times 10^{-6}$	$4 \times 10^{-3}$
E3	3	$6 \times 10^{-7}$	$5 \times 10^{-2}$	$8 \times 10^2$
M3	3	$7 \times 10^{-5}$	6	$9 \times 10^4$
E4	4	$6 \times 10^{-2}$	$1 \times 10^5$	$3 \times 10^{10}$
M4	4	7	$1 \times 10^7$	$3 \times 10^{12}$
E5	5	$8 \times 10^4$	$4 \times 10^{12}$	$2 \times 10^{19}$
M5	5	$9 \times 10^6$	$4 \times 10^{14}$	$2 \times 10^{21}$

## 2.2. Radioatividade natural

Após ser estabelecida a natureza física e química de todos os elementos radioativos existentes na natureza, verificou-se que cada radionuclídeo é um membro de uma das quatro séries ou cadeias radioativas, com exceção de poucos radioisótopos de origem cosmogênica. Na Tabela 3 estão relacionadas as quatro séries radioativas, seus nuclídeos iniciais, finais e seu número de massa. A série do Netúnio não pode mais ser observada na natureza, devido a este elemento ter meia-vida menor que a idade da Terra, logo esta pode ser verificada apenas artificialmente.

Tabela 3 - Produtos iniciais e finais das séries radioativas (extraída de BURCHAM, 1974)

Nome da série	Número de massa	Inicial	Período	Final
<b>Tório</b>	4n	$^{232}\text{Th}$	$1,4 \times 10^{10}$ a	$^{208}\text{Pb}$
<b>Netúnio</b>	4n+1	$^{237}\text{Np}$	$2,2 \times 10^6$ a	$^{209}\text{Bi}$
<b>Urânio</b>	4n+2	$^{238}\text{U}$	$4,5 \times 10^9$ a	$^{206}\text{Pb}$
<b>Actínio</b>	4n+3	$^{235}\text{U}$	$7,2 \times 10^8$ a	$^{207}\text{Pb}$

Nas Tabelas 4, 5 e 6 estão listados os membros das cadeias naturais e seus respectivos modos de desintegração, meia-vida, constante de desintegração e a energia máxima da partícula emitida. As Figuras 6, 7 e 8 mostram a variação no número atômico e no número de massa segundo a lei de deslocamento de Soddy para cada uma das cadeias do Urânio, do Actínio e do Tório.

Tabela 4 - Lista dos membros da cadeia do Urânio, com o modo de desintegração, a meia-vida, a constante de desintegração e a energia da partícula emitida (extraída de KAPLAN, 1963)

Elemento	Desintegração	Meia-vida	Cte desint., s <sup>-1</sup>	Energia partícula
${}_{92}\text{U}^{238}$	$\alpha$	$4,5 \times 10^9$ a	$4,88 \times 10^{-18}$	4,2 MeV
${}_{90}\text{Th}^{234}$	$\beta$	24,1 d	$3,33 \times 10^{-7}$	190 keV
${}_{91}\text{Pa}^{234}$	$\beta$	1,18 min	$9,77 \times 10^{-3}$	2,32 MeV
${}_{91}\text{Pa}^{234}$	$\beta$	6,7 h	$2,88 \times 10^{-5}$	1,13 MeV
${}_{92}\text{U}^{234}$	$\alpha$	$2,5 \times 10^5$ a	$8,8 \times 10^{-14}$	4,768 MeV
${}_{90}\text{Th}^{230}$	$\alpha$	$8 \times 10^4$ a	$2,75 \times 10^{-13}$	4,68 MeV
${}_{88}\text{Ra}^{226}$	$\alpha$	1620 a	$1,36 \times 10^{-11}$	4,777 MeV
${}_{86}\text{Em}^{222}$	$\alpha$	3,82 d	$2,1 \times 10^{-6}$	5,486 MeV
${}_{84}\text{Po}^{218}$	$\alpha, \beta$	3,05 min	$3,78 \times 10^{-3}$	$\alpha$ : 5,998 MeV
${}_{82}\text{Pb}^{214}$	$\beta$	26,8 min	$4,31 \times 10^{-4}$	700 keV
${}_{85}\text{At}^{218}$	$\alpha$	1,5-2 s	0,4	6,63 MeV
${}_{83}\text{Bi}^{214}$	$\alpha, \beta$	19,7 min	$5,86 \times 10^{-4}$	$\alpha$ : 5,51 MeV $\beta$ : 3,17 MeV
${}_{84}\text{Po}^{214}$	$\alpha$	$1,64 \times 10^{-4}$ s	$4,23 \times 10^3$	7,683 MeV
${}_{81}\text{Tl}^{210}$	$\beta$	1,32 min	$8,75 \times 10^{-4}$	1,9 MeV
${}_{82}\text{Pb}^{210}$	$\beta$	19,4 a	$1,13 \times 10^{-9}$	17 keV
${}_{83}\text{Bi}^{210}$	$\beta$	5 d	$1,6 \times 10^{-6}$	1,155 MeV
${}_{84}\text{Po}^{210}$	$\alpha$	138,3 d	$5,8 \times 10^{-8}$	5,3 MeV
${}_{81}\text{Tl}^{206}$	$\beta$	4,2 min	$2,75 \times 10^{-3}$	1,51 MeV
${}_{82}\text{Pb}^{206}$	estável			

Tabela 5 - Lista dos membros da cadeia do Actínio, com o modo de desintegração, a meia-vida, a constante de desintegração e a energia da partícula emitida (extraída de KAPLAN, 1963)

Elemento	Desintegração	Meia-vida	Cte desint., s <sup>-1</sup>	Energia Partícula
${}_{92}\text{U}^{235}$	$\alpha$	$7,1 \times 10^8$ a	$3,09 \times 10^{-17}$	4,559 MeV
${}_{90}\text{Th}^{231}$	$\beta$	25,6 h	$7,51 \times 10^{-6}$	300 keV
${}_{91}\text{Pa}^{231}$	$\alpha$	$3,43 \times 10^4$ a	$6,4 \times 10^{-13}$	5,046 MeV
${}_{89}\text{Ac}^{227}$	$\alpha, \beta$	21,6 a	$1,02 \times 10^{-9}$	$\alpha$ : 4,94 MeV $\beta$ : 46 keV
${}_{90}\text{Th}^{227}$	$\alpha$	18,17 d	$4,41 \times 10^{-7}$	6,03 MeV
${}_{87}\text{Fr}^{223}$	$\alpha, \beta$	22 min	$5,25 \times 10^{-4}$	$\alpha$ : 5,34 MeV $\beta$ : 1,2 MeV
${}_{88}\text{Ra}^{223}$	$\alpha$	11,68 d	$6,87 \times 10^{-7}$	5,864 MeV
${}_{85}\text{At}^{219}$	$\alpha, \beta$	0,9 min	$1,26 \times 10^{-2}$	$\alpha$ : 6,27 MeV
${}_{86}\text{Em}^{219}$	$\alpha$	3,92 s	0,177	6,81 MeV
${}_{83}\text{Bi}^{215}$	$\alpha, \beta$	8 min	$1,44 \times 10^{-3}$	?
${}_{84}\text{Po}^{215}$	$\alpha, \beta$	$1,83 \times 10^{-3}$ s	$3,79 \times 10^2$	$\alpha$ : 7,37 MeV
${}_{82}\text{Pb}^{211}$	$\beta$	36,1 min	$3,2 \times 10^{-4}$	1,39 MeV
${}_{85}\text{At}^{215}$	$\alpha$	$10^{-4}$ s	$7 \times 10^3$	8 MeV
${}_{83}\text{Bi}^{211}$	$\alpha, \beta$	2,15 min	$5,28 \times 10^{-3}$	$\alpha$ : 6,617 MeV
${}_{84}\text{Po}^{211}$	$\alpha$	0,52 s	1,33	7,442 MeV
${}_{81}\text{Tl}^{207}$	$\beta$	4,79 min	$2,41 \times 10^{-3}$	1,44 MeV
${}_{82}\text{Pb}^{207}$	estável			

Tabela 6 - Lista dos membros da cadeia do Tório, com o modo de desintegração, a meia-vida, a constante de desintegração e a energia da partícula emitida (extraída de KAPLAN, 1963)

Elemento	Desintegração	Meia-vida	Cte desint., s <sup>-1</sup>	Energia partícula
<sup>90</sup> Th <sup>232</sup>	α	1,39x10 <sup>10</sup> a	1,58x10 <sup>-18</sup>	4,007 MeV
<sup>88</sup> Ra <sup>228</sup>	β	6,7 a	3,28x10 <sup>-9</sup>	40 keV
<sup>80</sup> Ac <sup>228</sup>	β	6,13 h	3,14x10 <sup>-5</sup>	2,18 MeV
<sup>90</sup> Th <sup>228</sup>	α	1,91 a	1,15x10 <sup>-8</sup>	5,423 MeV
<sup>88</sup> Ra <sup>224</sup>	α	3,64 d	2,2x10 <sup>-6</sup>	5,681 MeV
<sup>86</sup> Em <sup>220</sup>	α	51,5 s	1,34x10 <sup>-2</sup>	6,28 MeV
<sup>84</sup> Po <sup>216</sup>	α, β	0,16 s	4,33	6,774 MeV
<sup>82</sup> Pb <sup>212</sup>	β	10,6 h	1,82x10 <sup>-5</sup>	580 keV
<sup>85</sup> At <sup>216</sup>	α	3x10 <sup>-4</sup> s	2,3x10 <sup>3</sup>	7,79 MeV
<sup>83</sup> Bi <sup>212</sup>	α, β	60,5 min	1,91x10 <sup>-4</sup>	α: 6,086 MeV β: 2,25 MeV
<sup>84</sup> Po <sup>212</sup>	α	3x10 <sup>-7</sup> s	2,31x10 <sup>6</sup>	8,78 MeV
<sup>81</sup> Tl <sup>208</sup>	β	3,1 min	3,73x10 <sup>-3</sup>	1,79 MeV
<sup>82</sup> Pb <sup>208</sup>	estável			

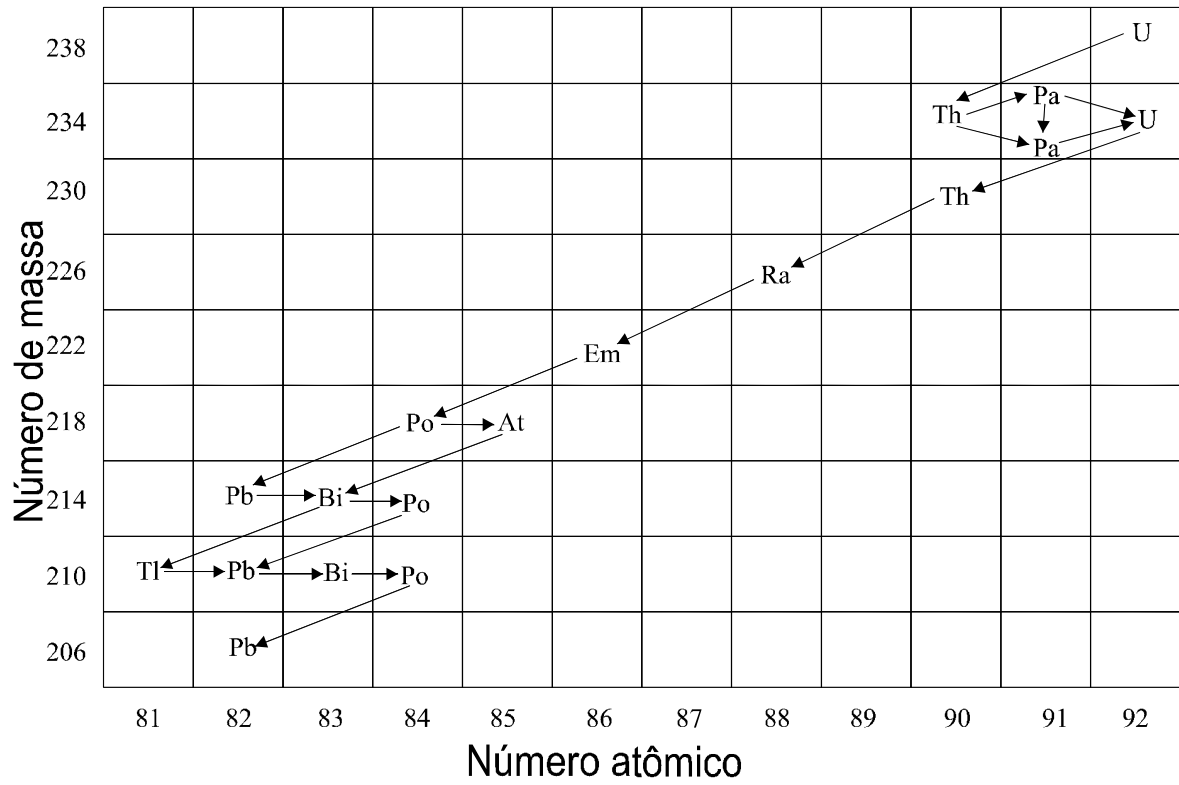


Figura 6 - Variação no número atômico e no número de massa para a cadeia do Urânio segundo a lei de deslocamento de Soddy (extraída de KAPLAN, 1963)

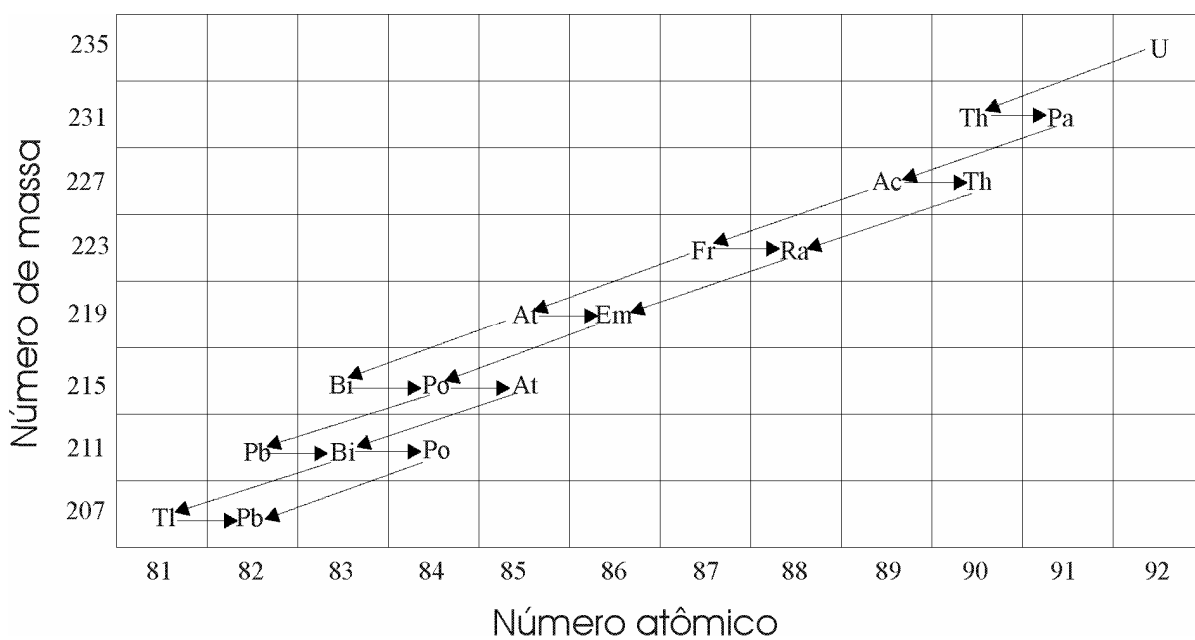


Figura 7 - Variação no número atômico e no número de massa para a cadeia do Actínio segundo a lei de deslocamento de Soddy (extraída de KAPLAN, 1963)

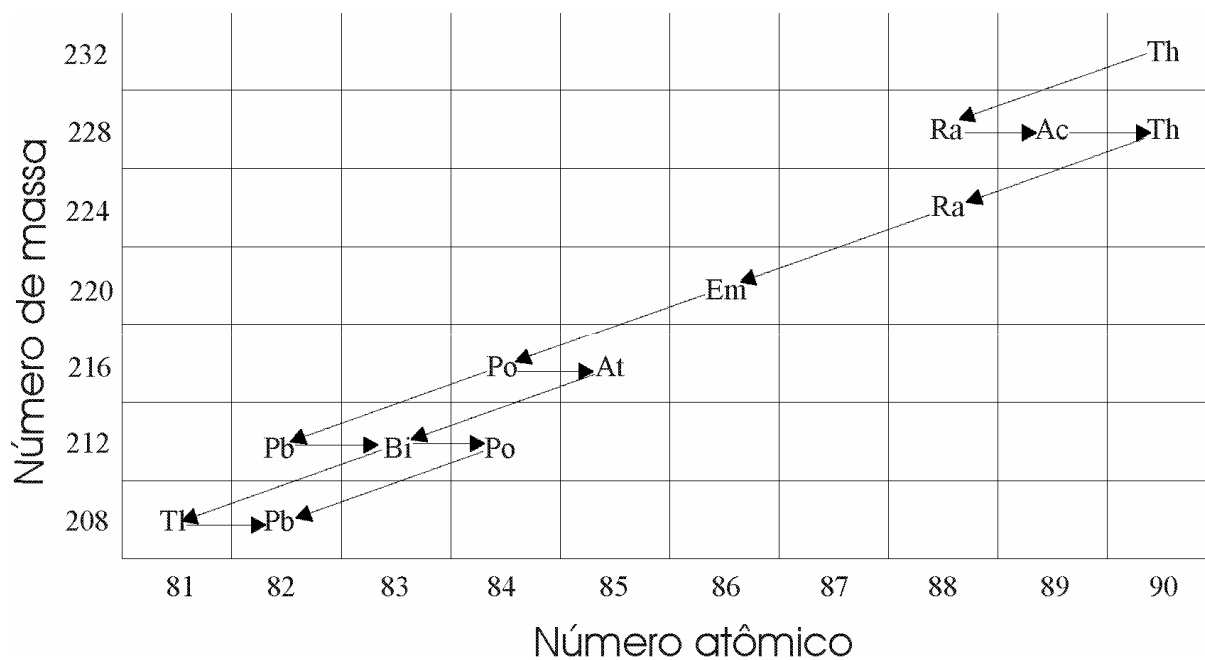


Figura 8 - Variação no número atômico e no número de massa para a cadeia do Tório segundo a lei de deslocamento de Soddy (extraída de KAPLAN, 1963)

Existem ainda alguns elementos radioativos naturais que não estão incluídos nas séries radioativas, e que são de fundamental importância para o trabalho a ser realizado. Estes elementos têm origem cósmica e serão tratados mais detalhadamente no próximo item, 2.2.1. Alguns destes elementos estão na Tabela 7. Dentre eles o que é mais encontrado é o potássio natural existente no concreto e outros materiais de construção, que apresenta 0,012% do radioisótopo  $^{40}\text{K}$ , o qual decai com uma meia-vida de  $1,3 \cdot 10^9$  anos através do esquema da Figura 9.

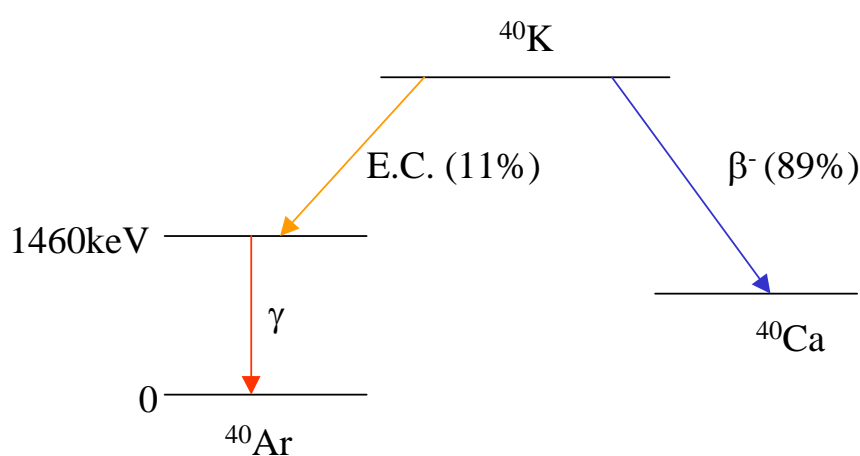


Figura 9 - Esquema de decaimento do  $^{40}\text{K}$

Tabela 7 - Materiais radioativos naturais não incluídos nas séries radioativas (extraída de BURCHAM, 1974)

Isótopo Radioativo	Período (anos)	Radiação	Energia da Partícula observada (MeV)
$^{40}\text{K}$	$1,3 \times 10^9$	$\beta^-$ , (CE)	1,32
$^{50}\text{V}$	$5 \times 10^{15}$	$\beta^-$ , (CE)	1,19 ; 2,39
$^{87}\text{Rb}$	$5 \times 10^{15}$	$\beta^-$	0,273
$^{115}\text{In}$	$6 \times 10^{14}$	$\beta^-$	0,6
$^{138}\text{La}$	$1 \times 10^{11}$	$\beta^-$ , (CE)	0,21
$^{144}\text{Nd}$	$3 \times 10^{15}$	$\alpha$	1,8
$^{147}\text{Sm}$	$1,3 \times 10^{11}$	$\alpha$	2,2
$^{176}\text{Lu}$	$4,5 \times 10^{10}$	$\beta^-$ , (CE)	0,43
$^{187}\text{Re}$	$4 \times 10^{12}$	$\beta^-$	0,043

### 2.2.1 Radiação cósmica

Chama-se de radiação cósmica o fluxo primário de partículas de alta energia que incidem continuamente sobre a Terra, procedentes do espaço, e também as radiações secundárias, que se originam da interação das partículas primárias na atmosfera.

O estudo dos raios cósmicos é importante, pois eles têm uma contribuição considerável no espectro de fundo das medidas de radioatividade natural. Na Tabela 8 apresentam-se as linhas observadas em um espectro de fundo medido durante 24 dias, dando destaque para a origem das linhas e a taxa de contagem, utilizando um detector de GeHP. Pode-se ver que 14 das 22 linhas são originadas pela radiação cósmica

A radiação cósmica é constituída basicamente de múons de ambas as cargas (75%) provenientes da desintegração de mésons  $\pi$  ou  $k$  na atmosfera, de fótons e elétrons. Somente 0,1% são prótons constituintes da radiação cósmica primária a altitudes muito altas. A produção de nêutrons por múons é grande, especialmente se elementos de alto  $Z$  estão presentes (BURCHAM, 1974).

Considerando os métodos para se detectarem os raios cósmicos, é necessário levar em conta três componentes: os nucleons, uma componente “suave” (principalmente elétrons, pósitrons e fótons) e uma componente “dura” (principalmente múons). A componente “suave” é facilmente absorvida, isto é, em uma pequena espessura, aproximadamente 10 mm, a radiação é quase totalmente absorvida, enquanto a componente “dura” necessita de uma grande espessura para ser pouco atenuada (BURCHAM, 1974). A Figura 10 apresenta os dados de absorção para o chumbo, mostrando as duas componentes.

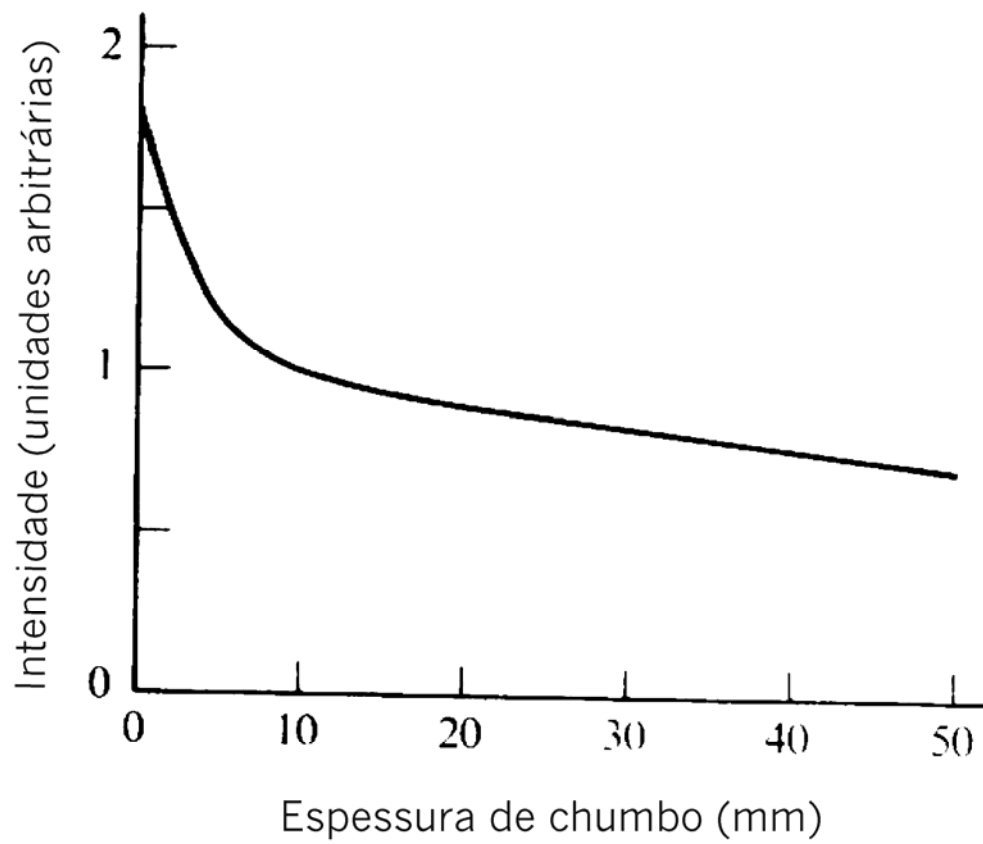


Figura 10 - Absorção da radiação cósmica ao nível do mar em chumbo. Observa-se a existência das componentes “suave” e “dura” (extraída de AUGER et al. 1936)

Tabela 8 - Raios X e raios gama encontrados num espectro de fundo registrado por 24 dias, com suas respectivas energias, origem e taxa de contagem (extraída de MOUCHEL, 1992)

Energia (keV)	Radionuclídeo	Origem	Taxa de Contagem (s <sup>-1</sup> )*
53,3	<sup>73</sup> Ge <sup>m</sup>	Cósmica	0,00058 ( 2 )
66,8	<sup>73</sup> Ge <sup>m</sup>	Cósmica	0,00078 ( 2 )
72,8/75,0	PbK <sub>α2</sub> / PbK <sub>α1</sub>	Cósmica	0,00350 ( 4 )
85/87	PbK <sub>β1</sub> / PbK <sub>β2</sub>	Cósmica	0,00176 ( 3 )
138,8	<sup>75</sup> Ge <sup>m</sup>	Cósmica	0,00055 ( 2 )
159,7	<sup>77</sup> Ge <sup>m</sup>	Cósmica	0,00016 ( 1 )
198,8	<sup>75</sup> Ge	Cósmica	0,00047 ( 2 )
277,4	<sup>208</sup> Tl	Cadeia do Tório	0,00021 ( 1 )
295,2	<sup>214</sup> Pb	Cadeia do Urânio	0,00026 ( 1 )
351,9	<sup>214</sup> Pb	Cadeia do Urânio	0,00020 ( 1 )
511,0	Aniquilação	Cósmica	0,01075 ( 7 )
569,6	<sup>207</sup> Pb	Cósmica	0,00025 ( 1 )
596	<sup>74</sup> Ge(n,n <sup>γ</sup> )	Cósmica	0,00180 ( 3 )
609,3	<sup>214</sup> Bi	Cadeia do Urânio	0,00025 ( 1 )
661,7	<sup>137</sup> Cs	Contaminação	0,00009 ( 1 )
669,9	<sup>63</sup> Cu	Cósmica	0,00014 ( 1 )
693	<sup>72</sup> Ge(n,n <sup>γ</sup> )	Cósmica	0,00240 ( 3 )
803,3	<sup>206</sup> Pb	Cósmica	0,00032 ( 1 )
838,0	Não identificado		0,00021 ( 1 )
899,0	Não identificado		0,00021 ( 1 )
962,0	<sup>63</sup> Cu	Cósmica	0,00021 ( 1 )
2614,7	<sup>208</sup> Tl	Cadeia do Tório	0,00008 ( 1 )
50 - 3000		Espectro Total	0,510 ( 1 )

\* O número entre parênteses fornece a incerteza estatística do último dígito mostrado

### 2.3. Radioatividade artificial

A descoberta de Curie e Joliot, de que os produtos de algumas transformações nucleares induzidas são radioativos, iniciou uma nova etapa na física nuclear. Em seus estudos descobriram que o bombardeio de partículas  $\alpha$  sobre núcleos de elementos leves pode originar elementos radioativos, daí o nome radioatividade artificial. Descobriu-se ainda que reações nucleares induzidas por prótons, dêuterons, nêutrons e fótons também podem resultar em produtos radioativos.

Os radionuclídeos artificiais podem ser caracterizados pela meia-vida e pela radiação que emitem, análogo aos radionuclídeos naturais. A Figura 11 mostra um gráfico dos radionuclídeos artificiais e naturais conhecidos.

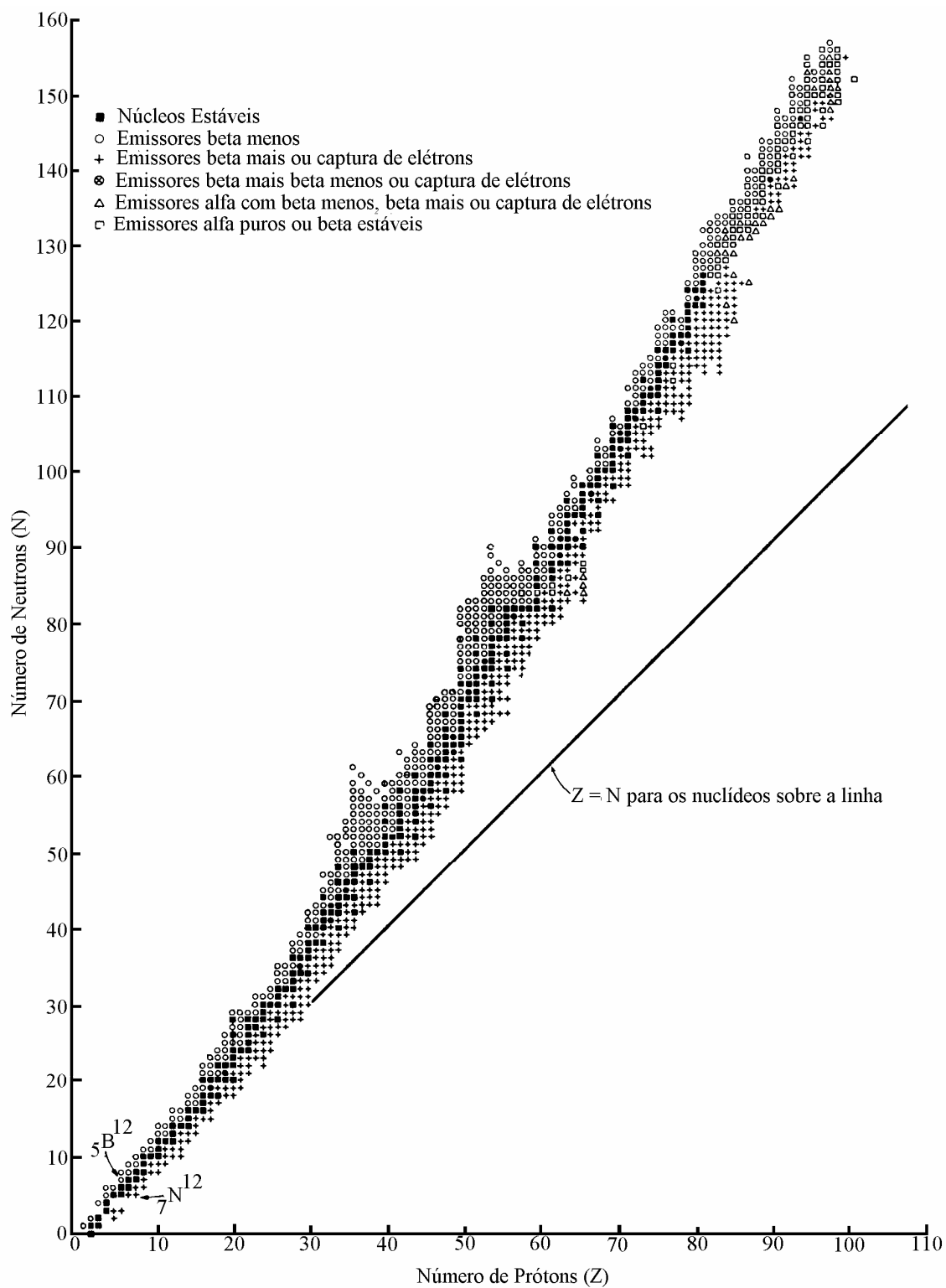


Figura 11 - Radionuclédeos naturais e artificiais conhecidos (extraída de KAPLAN, 1963)

### 2.3.1 "Fallout" radioativo

Os testes superficiais das bombas nucleares ou o vazamento de reatores nucleares ocasionaram o surgimento de vários elementos radioativos artificiais, encontrados atualmente em todo o globo terrestre devido ao "fallout".

Quando a explosão nuclear ocorre, uma nuvem de gás e vapor, a alta temperatura, é produzida. A altura e o diâmetro da nuvem depende da potência da bomba nuclear. A explosão de armas nucleares de potência menor que um megaton, na superfície terrestre, produz uma nuvem que atinge apenas a troposfera, sendo que os fragmentos maiores caem à terra por efeito gravitacional provocando o "fallout" local poucas horas depois da explosão, numa extensão de alguns quilômetros ao redor do ponto da explosão. Os fragmentos menores que alcançam a troposfera são transportados ao redor do globo terrestre pelos ventos, que têm sentido predominante de oeste para leste, sendo depositados na superfície terrestre pela precipitação atmosférica numa faixa de 20° a 30° a partir da latitude onde ocorre a explosão, num período de 4 a 7 semanas (GLASSTONG, 1964).

A explosão de armas nucleares de potência maior que um megaton, na superfície terrestre, produz uma nuvem que atinge a estratosfera, onde os ventos têm sentido de leste a oeste. Os fragmentos menores ficam bastante tempo na estratosfera por ter esta movimento lento e pouca umidade, impedindo a precipitação destes fragmentos. Estes fragmentos são transferidos para a troposfera terrestre no início da primavera, quando ocorre o surgimento da descontinuidade na tropopausa, devido à sua elevação desta pelo aumento da temperatura do ar. Devido a essa elevação da tropopausa, o material radioativo é depositado no solo pela incorporação de ar da estratosfera inferior para a troposfera e a formação de nuvens nesta região, seguida da forte

precipitação associada à primavera. Este é o mecanismo responsável pelo maior “fallout” neste período. No equador a tropopausa não sofre descontinuidade e é muito mais elevada que na zona temperada. Devido à ocorrência de temperaturas altas e relativamente uniformes, a concentração dos produtos de fissão na região do equador é muito inferior às encontradas a médias latitudes (GLASSTONG, 1964).

O tempo entre a injeção dos produtos de fissão na estratosfera e o “fallout” decorrente varia de 5 meses até 5 anos ou mais, dependendo da latitude, da altitude e da estação do ano onde ocorreu a explosão. Esse tempo é mais curto quando ocorre longe do equador e entre o final do outono e início do inverno, e mais longo quando ocorre próximo do equador e no meio da primavera. Os testes de superfície de armas nucleares ocorreram no período de 1952 a 1963, quando foi assinado o tratado de proibição de testes nucleares, restringindo-os à explosões subterrâneas.

A Figura 12 mostra um gráfico da deposição de  $^{137}\text{Cs}$ , incluindo o pico referente ao acidente de Chernobyl, que contribuiu para um “fallout” local, não atingindo todo o globo terrestre.

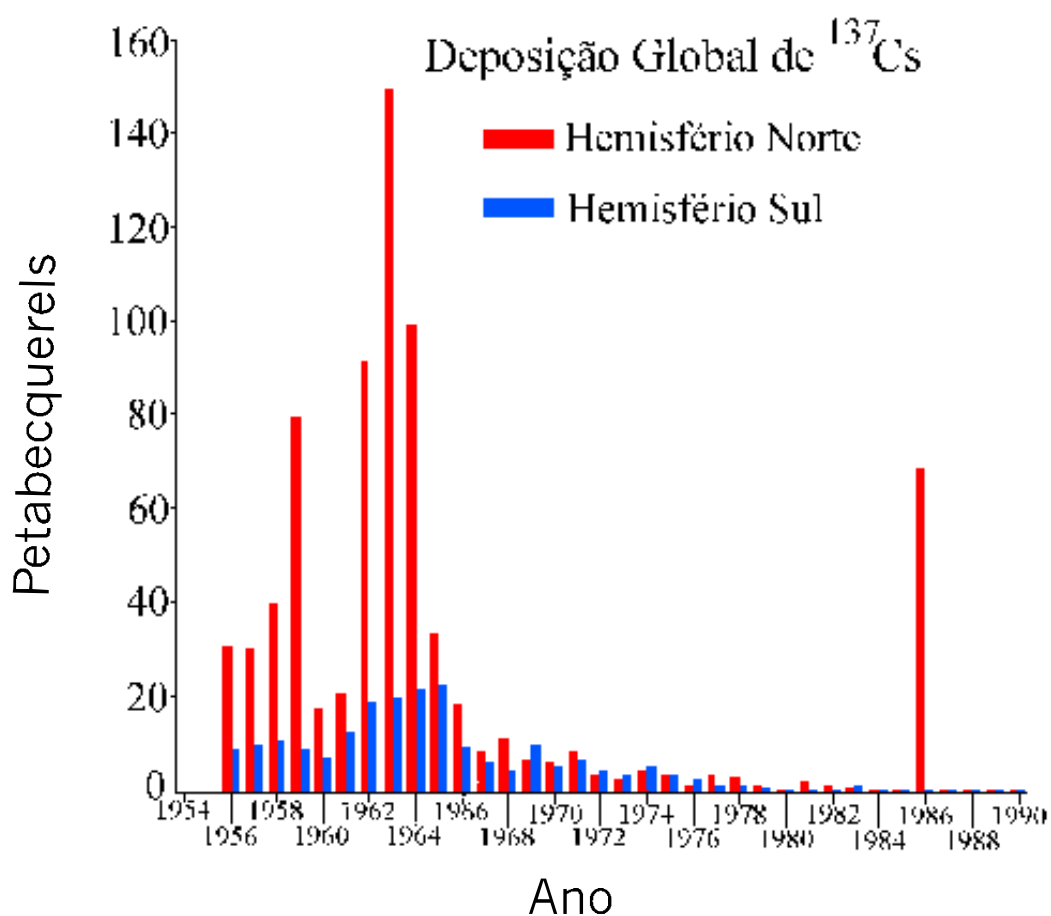


Figura 12 - Deposição global de  $^{137}\text{Cs}$  devido ao “fallout” radioativo

O “fallout” total de  $^{137}\text{Cs}$  no hemisfério norte é maior que no hemisfério sul, porque uma maior quantidade de testes atmosféricos nucleares foi feita no hemisfério norte, como mostra a Figura 12. Eventos locais como o acidente de Chernobyl têm impacto significativo na região onde ocorreu o acidente, ou seja, na região do “fallout” local, mas têm impacto limitado nas taxas de “fallout” global.

Na Figura 13 é feita uma comparação entre a deposição de  $^{90}\text{Sr}$  no hemisfério norte e no hemisfério sul.

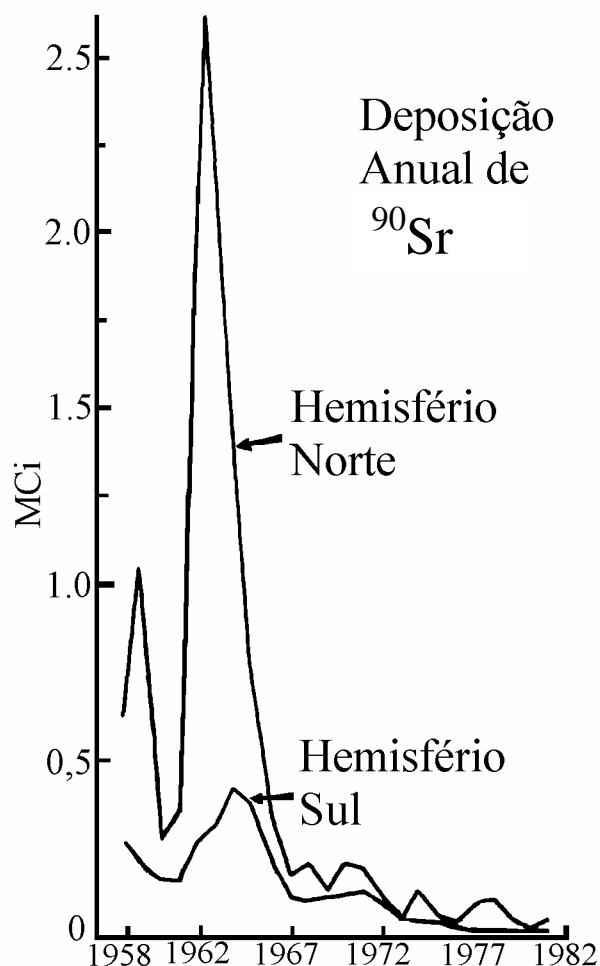


Figura 13 - Deposição global de  $^{90}\text{Sr}$  do “fallout” radioativo no hemisfério norte e no hemisfério sul. O  $^{137}\text{Cs}$  é igual a 1,45 vezes o  $^{90}\text{Sr}$  em formação (extraída de RITCHIE, 1990)

Em uma escala global, a incorporação dos elementos radioativos na biosfera provém da deposição dos elementos da atmosfera para a superfície da Terra, ou seja, através do “fallout”, como foi visto. Desta forma, após o fallout, o transporte dos elementos radioativos no ambiente envolve a transferência entre três componentes primárias: vegetação, solo e água. Na Figura 14, está representado o ciclo de incorporação do  $^{137}\text{Cs}$  no meio ambiente. Este modelo descreve o transporte de radionuclídeos entre os compartimentos que representam as diversas

matrizes ambientais, através de fatores de transferência e fatores de biocontaminação. O exemplo mostrado neste item refere-se ao Cs-137, porém é válido para qualquer outro nuclídeo radioativo.

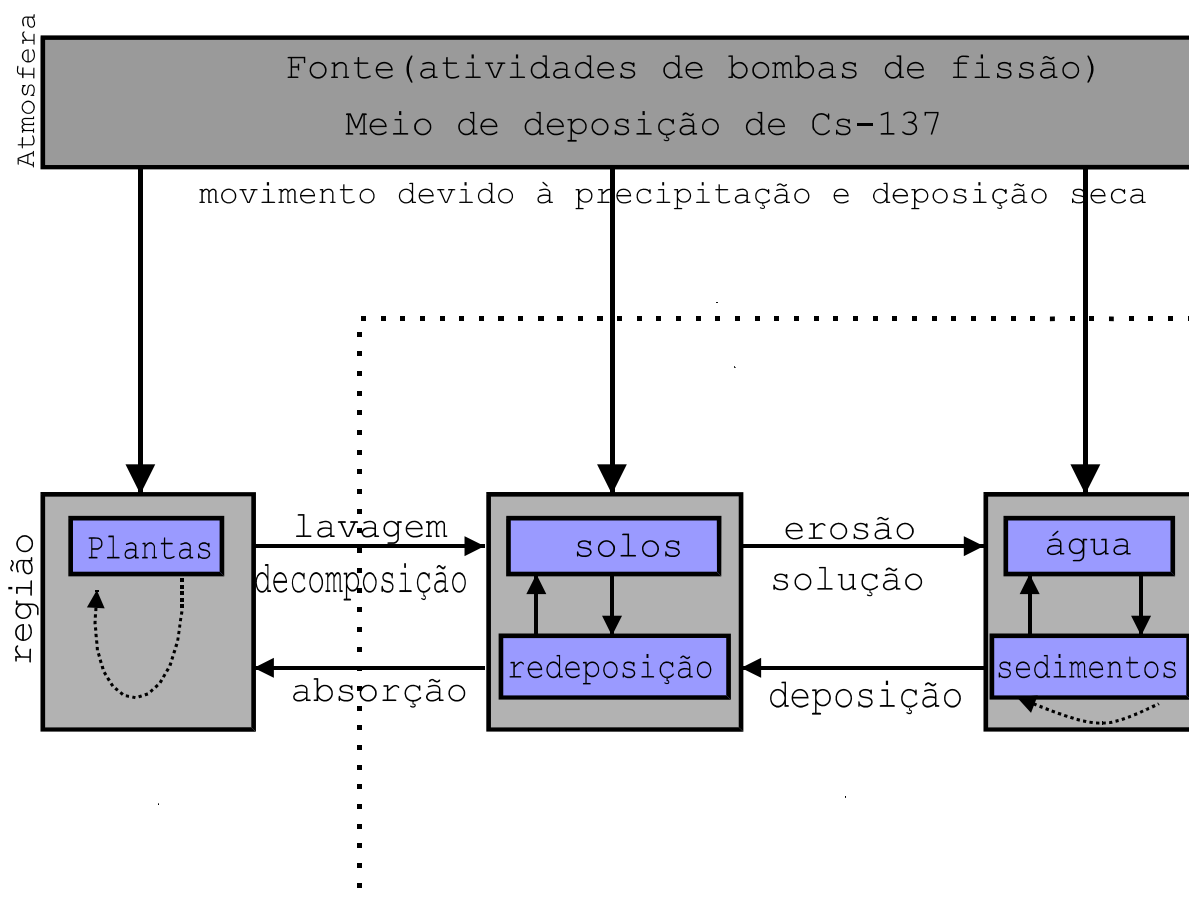


Figura 14 - Diagrama do ciclo do  $^{137}\text{Cs}$  na natureza (extraída de RITCHIE, 1990)

O esquema da Figura 15 descreve o ciclo de incorporação de radionuclídeos no solo até a absorção pelo homem, ou seja, através de que meios o homem ingere material radioativo.

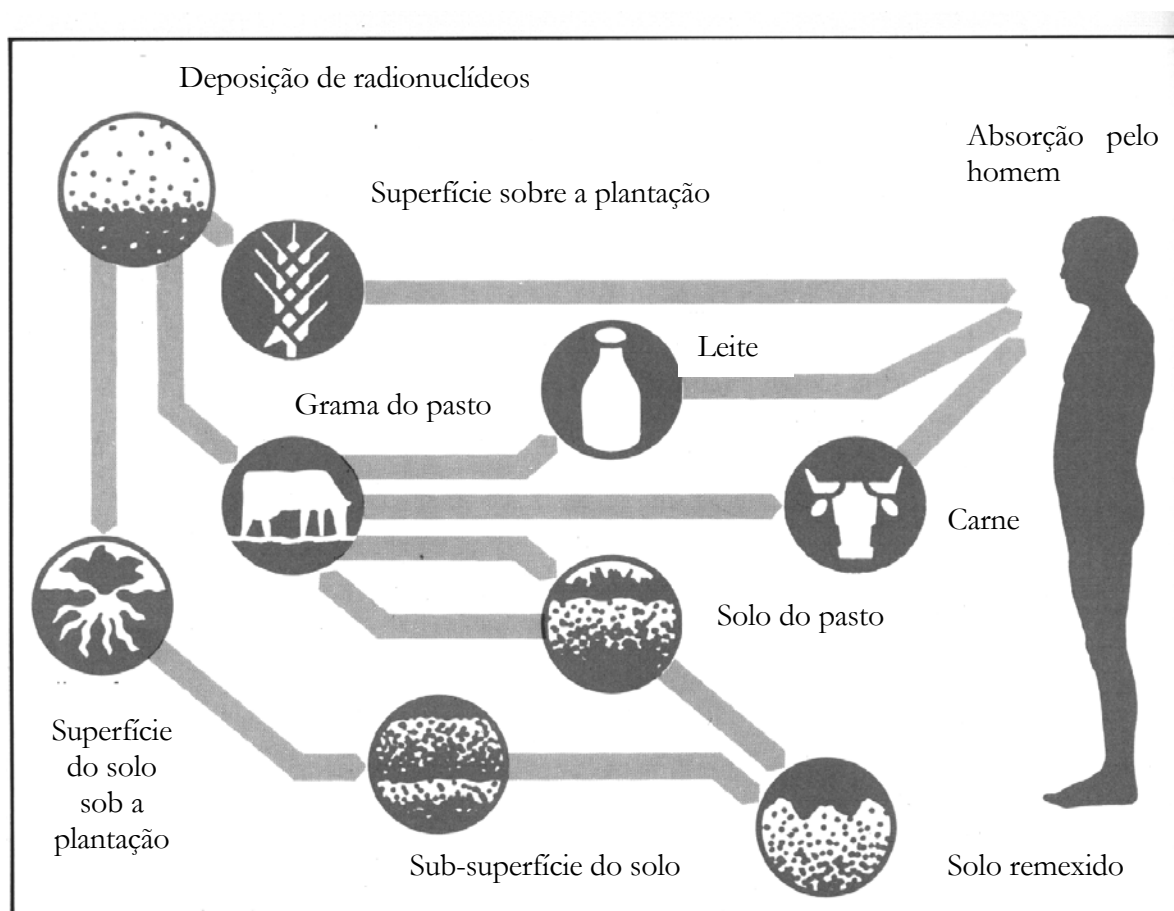


Figura 15 - Caminhos dos radionuclídeos no ambiente até a ingestão pelo homem. (extraída de RADIATION, 1985)

## 2.4 Doses máximas permissíveis de radioatividade em alimentos

O acidente nuclear de Chernobyl em 1986 espalhou uma grande quantidade de radionuclídeos no ambiente. Radionuclídeos como o  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  ainda hoje são detectáveis em certos alimentos devido à contaminação do solo e à deposição na vegetação.

Com isso, a comunidade europeia foi forçada a rever as doses máximas permitidas de radioatividade em alimentos. Foram estabelecidas as concentrações de atividades

permissíveis, expressas como a soma de  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , como sendo 370 Bq/kg para o leite, seus derivados e alimentos para bebês e de 600 Bq/kg para outros alimentos (BELJAARS et al., 1995).

A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) no Brasil estabeleceu, em 1988, os limites de atividade mostrados na Tabela 9.

Tabela 9 - Limites de radioatividade para leite em pó e outros produtos (extraída de CNEN,1988)

PRODUTO	RADIONUCLÍDEO	NÍVEL MÁXIMO ( Bq/kg )
Leite em pó	$^{134}\text{Cs}$ e $^{137}\text{Cs}$	3700 *
Demais produtos	$^{134}\text{Cs}$ e $^{137}\text{Cs}$	600

\* a) o leite com níveis de radiação, devido aos radioisótopos de Césio, inferiores a 370 Bq/kg de pó pode ser imediatamente liberado para consumo.

b) O produto que apresentar níveis de radiação entre 370 e 3700 Bq/kg de pó, somente pode ser liberado para o consumo após detalhada avaliação sócioeconômica.

c) Em hipótese nenhuma deve ser consumido leite cujos níveis de radiação estejam superiores a 3700 Bq/kg de pó.

## 3. REVISÃO DA LITERATURA

### 3.1 Aspectos da técnica

Neste item serão discutidos alguns dos artigos que foram utilizados para tratar detalhes da técnica empregada na medida dos traços radioativos nos leites em pó.

O espectro de fundo obtido com um detector de germânio de baixo fundo foi analisado por NUNEZ-LAGOS & VIRTO (1996). Diferentes fontes que originaram o fundo e a influência dos materiais usados bem como a espessura da blindagem foram estudadas. As fontes analisadas que contribuem para o fundo são: a eletrônica, a radioatividade intrínseca do detector, a radioatividade dos materiais que circundam o detector e a radiação cósmica. Verificou-se que material de blindagem em excesso pode induzir alguns raios gama devido à produção de nêutrons na blindagem pelos raios cósmicos. Por isso uma boa blindagem deveria ter 15 cm de chumbo bom, limpo e antigo, ou seja, um chumbo puro, que tenha passado por um cuidadoso processo de fundição e que não tenha ficado muito exposto ao “fallout” e à radioatividade natural.

A resolução e a linearidade da energia para detectores de Ge(Li) e Si(Li) foram medidas por ZULLIGER et al. (1969). Este trabalho mostra que a contribuição no FWHM (Full Width at Half Maximum) devido à coleta incompleta de carga é muito pequena nos detectores de Ge(Li).

VENTURINI & NISTI (1997) calcularam as correções de auto-absorção a serem aplicadas na espectrometria gama de amostras ambientais com densidades na faixa de 0,42 g/mL a 1,59 g/mL, quando a curva de eficiência é experimentalmente determinada para uma amostra de água medida na mesma geometria da amostra. Já TASKAEVA et al. (1996) desenvolveram um procedimento para preparação de padrões calibrados de baixa atividade em diferentes geometrias e tendo densidades diferentes. Materiais orgânicos e inorgânicos foram usados nas matrizes que tinham densidades entre 0,4 e 1,5 g/cm<sup>3</sup>. Este trabalho apresenta a variação da eficiência de contagem com a densidade da amostra.

### 3.2 Medida de radioatividade em amostras ambientais e alimentares

RAMACHANDRAN & MISHRA (1989) fizeram medidas de radioisótopos naturais em alguns gêneros alimentícios da dieta indiana e encontraram <sup>40</sup>K, <sup>226</sup>Ra (obtido do <sup>214</sup>Bi) e <sup>232</sup>Th (obtido do <sup>208</sup>Tl) com atividades de 3,62, 1,37, e 2,49 Bq, respectivamente. Foi utilizado um detector de NaI(Tl) com uma blindagem de 15 cm de chumbo e amostras incineradas.

BELJAARS et al. (1995) organizaram um estudo de intercomparação entre 13 laboratórios. Foram preparadas 8 amostras de mel, leite e ervas misturadas e distribuídas aos laboratórios equipados com detectores de NaI(Tl) com o objetivo de medir <sup>137</sup>Cs e <sup>134</sup>Cs. Foi realizada ainda uma medida com cada amostra num detector de Ge(Li) e esta considerada como o valor verdadeiro da atividade medida. As medidas dos 13 laboratórios foram comparadas com os valores do Ge(Li) e feitas as devidas análises estatísticas levando em conta as condições de repetitividade e reprodutibilidade.

Outro estudo de intercomparação, agora para determinar a presença de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{131}\text{I}$  em alimentos foi elaborado por BARATTA & EASTERLY (1989). Eles prepararam diversas amostras, contendo uma determinada quantidade de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{131}\text{I}$ , que foram enviados para 45 laboratórios. No entanto, somente 27 laboratórios fizeram as medidas com 3 repetições para cada radionuclídeo escolhido. Num segundo estudo, prepararam novas amostras com diferentes quantidades de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{131}\text{I}$  e enviaram para 54 laboratórios, obtendo resposta de 21 deles. A análise estatística dos resultados mostra que o método é aceitável para análise de alimentos contendo  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{131}\text{I}$ .

Após o acidente de Chernobyl, algumas medidas das atividades de  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{131}\text{I}$  em alguns alimentos da Romênia foram realizadas por CONSTANTINESCU et al. (1990), utilizando um detector de Ge(Li) de 10,5% de eficiência relativa. O principal propósito deste trabalho foi comparar os valores encontrados com o modelo predito pela Roumanian National Physical Society.

COKESA et al. (1995) determinaram a atividade de  $^{40}\text{K}$  e  $^{137}\text{Cs}$  em amostras de mel. Dezessete amostras de mel coletadas em diferentes lugares durante o ano de 1992 foram analisadas com um detector de GeHP de 14,5% de eficiência relativa. Os resultados mostram que apenas 2 das 17 amostras apresentaram atividade de  $^{137}\text{Cs}$  maior que 0,5 Bq/kg. A atividade predominante em todas as amostras vem do  $^{40}\text{K}$ , cuja atividade média é da ordem de  $14 \pm 2$  Bq/kg.

No manual da Agência Internacional de Energia Atômica, IAEA-295 (1994), são apresentadas técnicas de medida de radionuclídeos em alimentos e no ambiente, indicando as amostras preferenciais para serem analisadas, os requisitos da eletrônica e a infra-estrutura do

laboratório necessários para as medidas. Apresenta também um detalhado método para a determinação de emissores gama, utilizando detectores de germânio.

A radioatividade natural de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{232}\text{Th}$  em amostras de fosfatos naturais, gessos industriais (fosfogessos) e solos superficiais de diferentes regiões foi medida por espectrometria gama por PESSENDA et al. (1988). As faixas de atividades encontradas para os fosfatos, gessos e solos foram, respectivamente: 79,1 – 3180,0 Bq/kg, 56,3 – 986,6 Bq/kg, 8,8 – 54,3 Bq/kg para o  $^{226}\text{Ra}$  e 33,6 – 1450,3 Bq/kg, 17,4 – 130,1 Bq/kg, 9,8 – 108,9 Bq/kg para o  $^{232}\text{Th}$ .

### 3.3 Medida de radioatividade em amostras de leite em pó

Para se avaliar a atividade de  $^{40}\text{K}$  natural em amostras de leite em pó, DE NADAI et al. (1988) utilizou um detector de GeHP coaxial com 10,5% de eficiência relativa na geometria de béquer Marinelli. Foram utilizadas ainda, amostras certificadas da IAEA como materiais de referência. Foram analisados leites nacionais e importados obtendo valores de atividade para o  $^{40}\text{K}$  entre 362 e 515 Bq/kg.

Medidas de níveis ambientais de  $^{40}\text{K}$  e  $^{137}\text{Cs}$  em solos, sedimentos marinhos e gêneros alimentícios foram realizadas na Venezuela por LaBREQUE et al. (1992), com um detector de NaI(Tl) e com um detector de GeHP de 25% de eficiência. Foram realizadas medidas com 8 marcas diferentes de leite em pó, obtendo para o  $^{137}\text{Cs}$  valores de atividade entre 0,98 e 2,21 Bq/kg, com desvio padrão de 23 % e para o  $^{40}\text{K}$  entre 329 a 440 Bq/kg, com desvio padrão de menos de 10%, valores estes medidos com um limite de confiabilidade de 95%.

SANTOS FILHO & KRETER (1997) analisaram amostras de leite de vaca coletadas pelo INB-FEC, no período de 1981 a 1996, em diversos pontos da região circunvizinha ao Complexo Industrial de Resende. As amostras foram calcinadas a 400°C e as cinzas enviadas ao Laboratório de Monitoramento Ambiental de Furnas Centrais Elétricas, em Angra dos Reis, para serem analisadas por espectrometria gama com um detector de GeHP. No mesmo período de tempo, Furnas Centrais Elétricas coletou amostras de leite em fazendas próximas ao CNAAA em Angra dos Reis/Parati. O objetivo deste trabalho foi mostrar os resultados traçando um paralelo entre as atividades de  $^{137}\text{Cs}$  nas duas regiões. As análises foram executadas com atividade mínima detectável (AMD) menor que a especificada no Reg. Guide 4.8. Os resultados obtidos mostram a presença de um único radionuclídeo artificial, o  $^{137}\text{Cs}$ , em 94 das 121 amostras analisadas. Estes valores refletem o processo de “fallout” na região. A média anual, encontrada pela INB, está entre 0,04 a 0,2 Bq/L. Para os valores da CNAAA, a média anual variou de 0,13 a 0,46 Bq/L.

Visando esclarecer uma possível anomalia no solo de uma região de Angra dos Reis devido à presença de  $^{137}\text{Cs}$ , o Laboratório de Radioisótopos do Instituto de Biofísica e o Laboratório de FURNAS, conforme CASTRO et al. (1985), decidiram realizar uma série de medidas de  $^{137}\text{Cs}$  em amostras de leite, capim e solos coletados periodicamente em 4 fazendas. Os resultados obtidos demonstram a não existência de uma anomalia de comportamento de  $^{137}\text{Cs}$  no solo da região. Os teores de  $^{137}\text{Cs}$  em leite variaram de 0,05 a 0,93 Bq/L, mas os valores médios, de acordo com testes de médias, não foram estatisticamente diferentes para as 4 fazendas.

Os radionuclídeos naturais  $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  foram observados por YU & MAO (1994) em bebidas consumidas em Hong Kong, incluindo leite, água e refrigerantes. As concentrações foram determinadas utilizando espectrometria de raios gama de baixo fundo com

um detector de GeHP, tipo-n com 25% de eficiência relativa. Uma amostra de água contendo atividade conhecida dos radionuclídeos de interesse foi utilizada como padrão. A incerteza na atividade foi  $\pm 5\%$ . Foram preparadas 6 amostras de leite, 8 de refrigerante e 13 de água. Os resultados foram apresentados em valores de AMD e médias ponderadas, não apresentando nenhum nível de contaminação.

## 4. MATERIAIS E MÉTODOS

### 4.1 Sistema de detecção e geometria

#### 4.1.1 Equipamentos do laboratório

Para a coleta de dados foram usados os seguintes módulos eletrônicos:

- 1) Fonte de alta tensão, cuja função é alimentar o detector. A fonte usada é o modelo Ortec 456 com capacidade de fornecer 3000V em três estágios. O primeiro varia de 0 – 100V em passos de 0,2V, o segundo varia de 0 – 400V em intervalos de 100V e o terceiro estágio varia de 0 – 2500V em passos de 500V.
- 2) Amplificador linear, modelo Ortec 575, para processar os sinais vindos do pré-amplificador do detector. Ele tem a função de dar forma e ganho de amplitude ao pulso medido, proveniente do sinal de carga coletado. 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, 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 forma do mesmo pico. O tempo de formação do pico do amplificador utilizado é 1,5  $\mu\text{s}$ . O amplificador, modelo Ortec 575 possui dois estágios de ajuste de ganho, um grosso e um fino, que juntos fornecem uma faixa de ganho de 5 a 750 vezes. O ganho grosso tem as opções de ganho de 10,

- 20, 50, 100, 200 e 500. O ganho fino varia com um fator de ganho de 0,5 a 1,5 em passos de 0,1. 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.
- 3) Placa multicanal, modelo EG&G Ortec Trump-8K/2K ( multichannel buffer – MCB ), acoplada a um computador PC, com capacidade de ajuste para 8192, 4096, 1024 e 512 canais.
  - 4) Gerador de pulsos, modelo EG&G Ortec 419, utilizado para determinar o FWHM da eletrônica. Ele é conectado ao pré-amplificador e gera um pico que passa somente pela eletrônica. O gerador de pulsos utilizado tem a possibilidade dos seguintes ajustes: a polaridade dos pulsos, positiva ou negativa; a voltagem de referência pode ser interna ou externa; o pulso pode ser de frequência alternada ou de oscilação interna, o tempo de subida do pico pode assumir desde um valor mínimo, até 20, 50, 100 ou 250 ns e a altura do pulso variada de 0 a 10 V em passos de 0,2 V.
  - 5) Osciloscópio, modelo Tektronix TDS 220, ligado na saída do amplificador para analisar a forma do pico de saída. O osciloscópio usado é do tipo digital, de tempo real com largura de banda de 100 MHz, taxa de amostra de 1GS/s e extensão de registro de 2500 pontos para cada canal.

O esquema na Figura 16 mostra o diagrama de blocos da eletrônica. Seu funcionamento básico pode ser descrito da seguinte forma: o cristal do detector absorve a energia de um raio gama ou de um raio X incidente e produz um pulso de corrente, cuja energia é proporcional à energia absorvida. Este pulso é analisado, convertido em um pulso de voltagem e adquire a forma gaussiana no amplificador. Os pulsos de saída deste amplificador vão para o analisador de altura de pulso onde são classificados e armazenados por um número de canais de acordo com suas alturas de pulso. Assim um espectro adquirido pelo analisador de altura de pulso

(analisador multicanal) representa o número de contagens por canal como uma função da altura do pulso ou da energia.

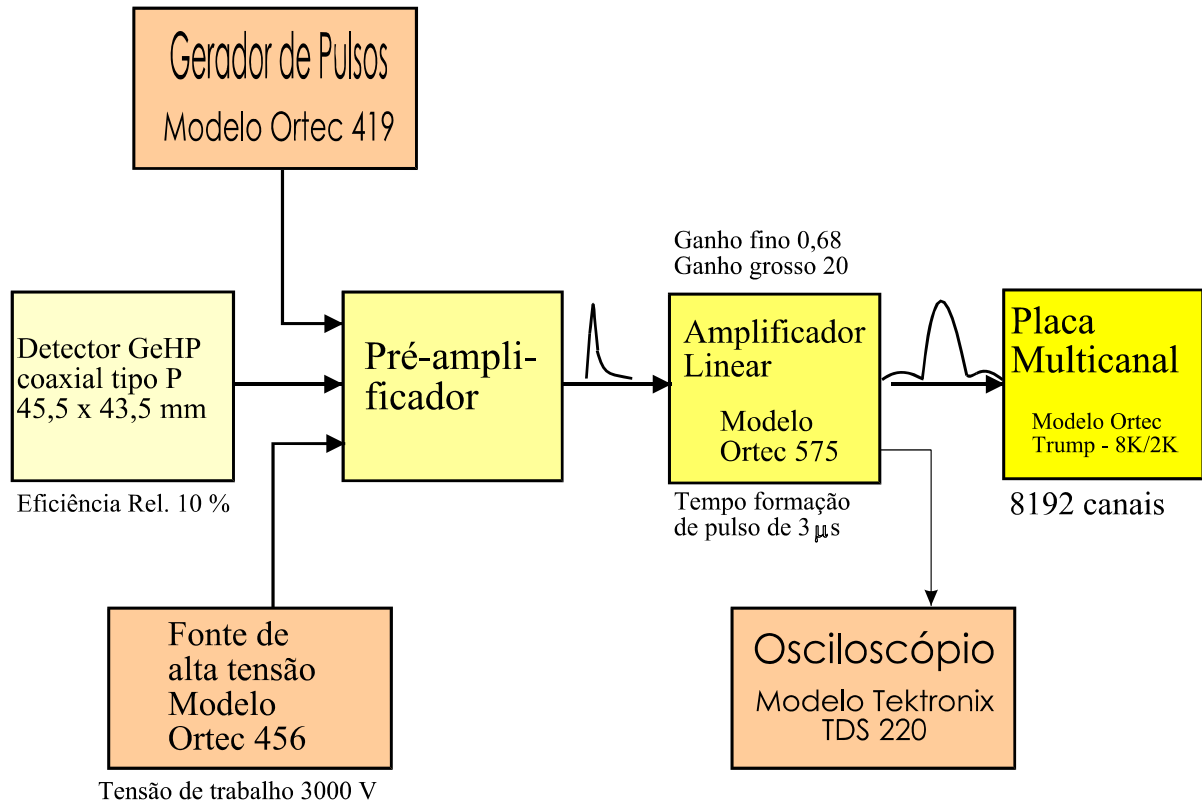


Figura 16 - Esquema de blocos para os componentes da eletrônica utilizada.

#### 4.1.2 Ajustes na eletrônica nuclear de aquisição de dados

Os dados foram adquiridos com os equipamentos descritos no item anterior e com os devidos ajustes especificados a seguir:

- 1) A fonte de alta tensão foi utilizada em sua capacidade máxima, ou seja, 3000 V.
- 2) O amplificador foi ajustado com um fator de ganho fino de 0,68 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.
- 3) O analisador multicanal foi utilizado no ajuste de 8192 canais para a aquisição dos dados.

- 4) As especificações do gerador de pulsos foram: polaridade positiva, voltagem de referência interna, pulso de oscilação interna e tempo de subida de 50 ns.

#### 4.1.3 Detector de germânio hiperpuro – GeHP

O detector utilizado é do tipo GeHP, ou seja, é um detector semicondutor constituído de um cristal de Germânio híper puro. As impurezas ainda restantes no cristal, no caso, são receptores (“buracos”), assim as propriedades elétricas do cristal semicondutor são do tipo – p.

O cristal é como um diodo, capaz de suportar alta voltagem a temperatura criogênica. Sob estas condições, os pares elétron-buraco produzidos pela absorção de um raio X ou um raio gama são direcionados para os contatos opostos por um campo elétrico. O pulso de corrente induzido é analisado por um pré-amplificador sensível a carga que produz um pulso de voltagem de saída com altura proporcional à energia do fóton incidente.

A geometria do cristal é coaxial e de extremidade fechada, o que resulta num detector com volume ativo maior e reduz as correntes de fuga. O cristal tem um diâmetro igual a 45,5 mm e comprimento de 43,5 mm, envolto em uma camada protetora de alumínio de espessura 1,27 mm e a uma distância de 3 mm do cristal. A espessura da região de depleção varia de 500 a 800 microns.

A faixa de energia dos raios gama analisados pelo detector varia de 40 keV a 10 MeV. O detector pode trabalhar com uma tensão de polarização de até 3500 V. No presente caso, utilizou-se uma diferença de potencial de 3000 V como descrito no item 4.1.2.

#### 4.1.3.1 Resolução em energia

A resolução em energia de um detector está relacionada com a largura a meia altura do pico, FWHM (“full width at half maximum”), que o detector exibe para uma determinada linha de energia. Quanto menor é a largura a meia altura do pico, melhor é a habilidade do detector em identificar a energia da radiação incidente.

A resolução em energia total, 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 de coleta de carga e contribuição do ruído eletrônico. A largura máxima à meia altura  $(FWHM)_T$  de um pico típico no espectro, devido à detecção de um raio gama monoenergético, pode ser escrita como (KNOLL, 1989):

$$(FWHM)_T^2 = (FWHM)_D^2 + (FWHM)_X^2 + (FWHM)_E^2 \quad \text{Equação 20}$$

O primeiro destes termos,  $(FWHM)_D^2$ , representa a flutuação estatística no número de carregadores de carga criados no detector e é dado por:

$$(FWHM)_D^2 = (2,35)^2 F \varepsilon E \quad \text{Equação 21}$$

onde  $F$  é o fator de Fano,  $\varepsilon$  é a energia necessária para criar um par elétron-buraco e  $E$  é a energia do raio gama.

A contribuição do segundo termo,  $(FWHM)_X^2$ , é devido à coleta incompleta de carga e é mais significativa em detectores de volume grande e campo elétrico baixo. O terceiro fator,  $(FWHM)_E^2$ , representa os efeitos de borda em todos os componentes eletrônicos que cercam o detector, ou seja, é a contribuição do ruído eletrônico. Este termo é medido utilizando um gerador de pulsos, que é ligado ao pré-amplificador e cujo sinal de saída passa por todos os componentes eletrônicos. O pico do gerador de pulsos é comparado com o pico de medida vindo do detector e com isso determina-se a largura devida somente à eletrônica, demonstrado no espectro da Figura 17.

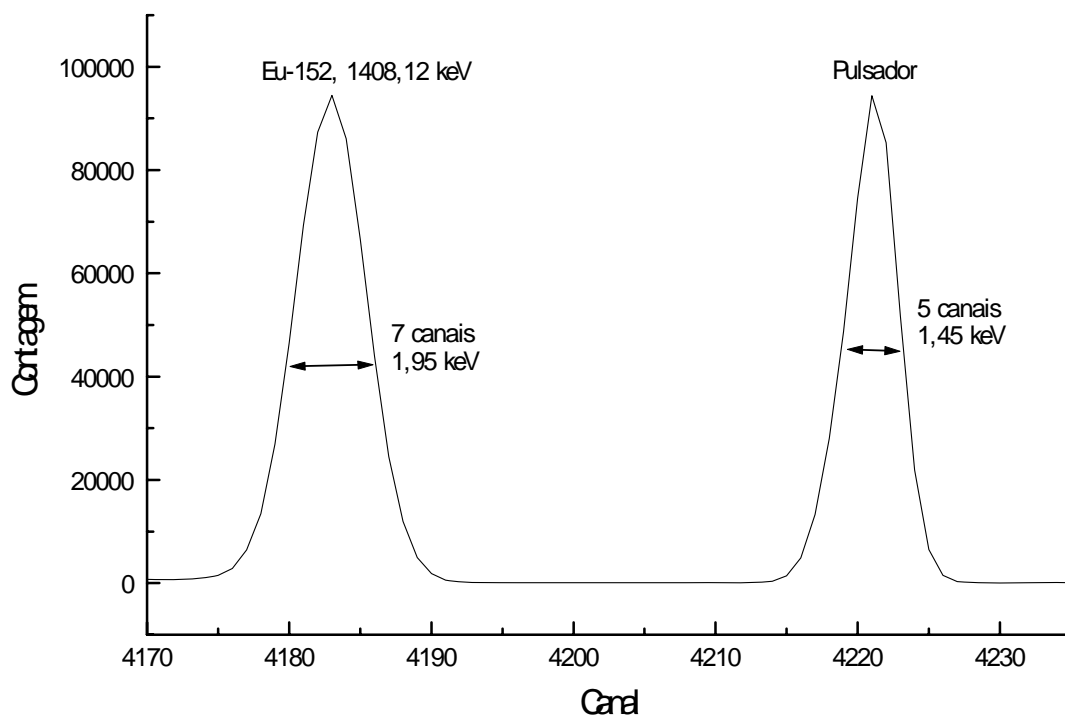


Figura 17 - Espectro comparativo entre o pico de 1408,12 keV do  $^{154}\text{Eu}$  e o pico com o pulsador

O termo  $(FWHM)_X^2$  segue o padrão ajustado pelo comportamento da eficiência de coleta de carga e, de acordo com (ZULIGER et al., 1969), sua contribuição na resolução em

energia total de um detector de Germânio é menor que 1% para energia maiores que 50keV e continua decrescendo para energias mais elevadas. Assim o termo  $(FWHM)_x^2$  será desprezado nas considerações deste trabalho.

Considerando o termo  $(FWHM)_x^2 = 0$  e uma vez que foram medidos o  $(FWHM)_T^2$  e o  $(FWHM)_E^2$ , a contribuição devido à flutuação estatística  $(FWHM)_D^2$  pode ser calculada usando a seguinte equação:

$$(FWHM)_D^2 = (FWHM)_T^2 - (FWHM)_E^2 \quad \text{Equação 22}$$

A Tabela 10 mostra os valores experimentais obtidos com uma fonte de  $^{152}\text{Eu}$  para os fatores que contribuem na resolução em energia do detector utilizado.

Tabela 10 - Contribuição do  $FWHM$  na resolução em energia do detector de GeHP em valores absolutos e percentuais

Energia $^{152}\text{Eu}$ [keV]	Contribuição Total $(FWHM)_T$ - [keV]	Contribuição Total $(FWHM)_T^2$ - [keV] <sup>2</sup>	Contribuição da Eletrônica $(FWHM)_E^2$ - [keV] <sup>2</sup>	Contribuição da Estatística $(FWHM)_D^2$ - [keV] <sup>2</sup>
1408,12	1,95	3,8025	2,1025 (55%)	1,7000 (45%)
1112,23	1,81	3,2761	1,9044 (58%)	1,3717 (42%)
963,94	1,76	3,0976	1,7956 (58%)	1,0320 (42%)
344,28	1,39	1,9321	1,7956 (93%)	0,1365 (7%)

#### 4.1.3.2. Eficiência de detecção

A eficiência de detecção é a capacidade dos detectores de produzir um pulso de saída para cada quantum de radiação que interage com o volume ativo do detector. Para detectores de radiação secundária (radiação eletromagnética e partículas sem carga), que é o caso deste trabalho, a eficiência de detecção é menor que 100% devido ao fato de que radiações secundárias têm um livre caminho médio muito grande, podendo passar pelo detector sem interagir ou interagindo parcialmente com o seu volume ativo.

A eficiência de detectores de radiação secundária pode ser dividida em três classes: eficiência absoluta, eficiência intrínseca e eficiência relativa. A eficiência absoluta é definida como a razão entre o número de pulsos registrados no detector pelo número de quanta de radiação emitido pela fonte. A eficiência intrínseca é a razão entre o número de pulsos registrados no detector pelo número de quanta de radiação incidente no detector. A eficiência relativa, no caso, para detectores de germânio é a razão da eficiência absoluta do detector pela eficiência absoluta de um detector de cintilação de NaI(Tl) de 3" x 3" a 25 cm de distância da fonte, como definido em "Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Rays Detectors"(I.E.E.E., 325). A eficiência relativa do detector de GeHP utilizado é 10%, de acordo com o certificado fornecido pelo fabricante.

#### *4.1.3.3 Blindagem do sistema de detecção*

Torna-se necessária a utilização de uma blindagem no sistema de detecção devido ao contínuo bombardeio de radiação que atinge a superfície terrestre, proveniente de raios cósmicos e de raios gama de fontes naturais e artificiais. Isto faz com que exista um espectro de fundo em todas as medidas.

As fontes dessa radiação de fundo podem ser os materiais constituintes do detector, dos equipamentos ou da blindagem localizada ao redor do detector. Um exemplo é o potássio natural presente no concreto e em outros materiais de construção, que apresenta uma linha de 1460 keV bastante destacada no espectro de fundo.

Quando se analisam fontes com alta taxa de emissão, o espectro de fundo não interfere relevantemente. Porém, na análise de baixa emissão de radiação ou de amostras ambientais, o fundo contaminará todo o espectro. Para que a contribuição dos raios gama externos (espectro de fundo) seja mínima no espectro da amostra ou da fonte analisada, é preciso fazer uma blindagem para o sistema detector/recipiente de detecção.

O material mais usado em castelos de blindagem é o chumbo, devido ao seu alto número atômico e sua alta densidade. No entanto, existe ainda a possibilidade da emissão de radiação por traços de isótopos radioativos encontrados no chumbo e pelo fato da radiação cósmica, ao interagir com a blindagem de chumbo, formar radiação secundária. Normalmente se usam outros materiais menos densos, justapostos à parede interna dos blocos de chumbo em ordem decrescente de densidade ou número atômico.

Para definir a blindagem a ser utilizada neste trabalho foram feitos alguns testes. Inicialmente foi realizada uma medida sem blindagem nenhuma. Depois uma medida só com tijolos de 10 cm de chumbo, depois com chumbo e placas de 4 mm de ferro, em seguida com chumbo e placas de alumínio de 2 mm e por fim uma medida com chumbo, ferro e alumínio.

Após comparar os espectros de cada medida, mostrados na Figura 18, conclui-se que para uma faixa de energia, até o canal 1000 aproximadamente, seria melhor a blindagem somente com chumbo. Porém, para a faixa de energia de interesse, que é faixa de energia do  $^{137}\text{Cs}$ , em torno do canal 2245, a melhor blindagem foi a da seqüência de chumbo (10 cm), ferro (4 mm) e alumínio (2 mm), sendo esta a escolhida para ser utilizada durante todo o decorrer das medidas realizadas. As placas de ferro e alumínio foram justapostas à parte interna dos tijolos de chumbo. O tempo de aquisição de dados do espectro de fundo foi 8 horas. A taxa de contagem do espectro de fundo varia grandemente com o tipo de detector e com a espessura da blindagem usada, desta forma é necessário fazer um ajuste destes parâmetros para obter uma otimização do tempo de contagem do espectro da amostra.

As Figuras 19 e 20 mostram, respectivamente, espectros de fundo sem blindagem nenhuma e com a blindagem de chumbo, ferro e alumínio, utilizada neste trabalho. A informação relevante dos espectros está na diferença observada para a taxa de contagem de fundo que é bem menor para o espectro com blindagem.

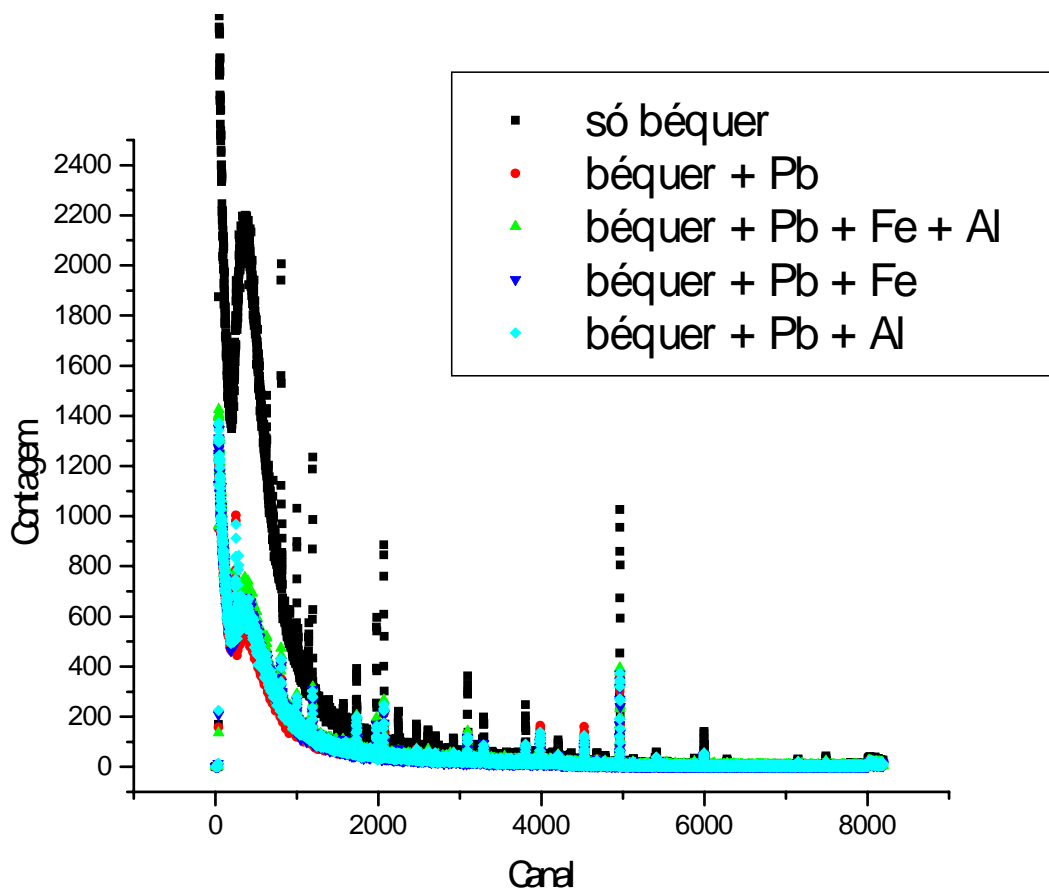


Figura 18 - Espectro ilustrativo das várias medidas para definição da seqüência de blindagem a ser utilizada (tempo de cada medida igual a 8h)

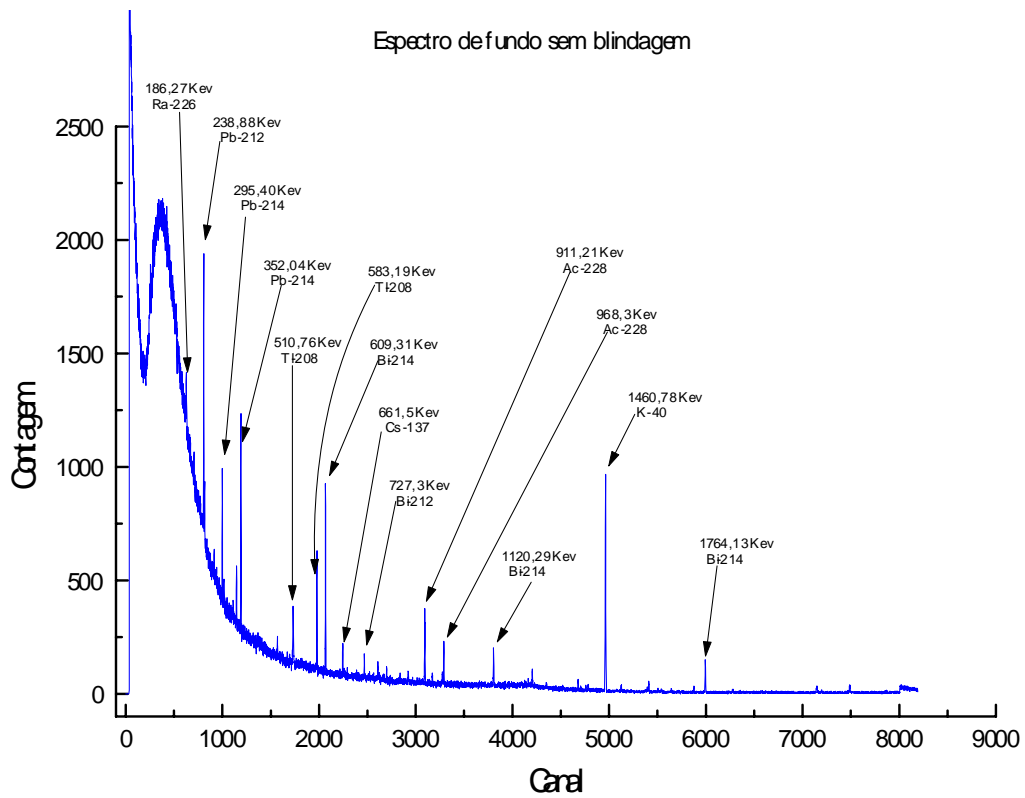


Figura 19 - Espectro de fundo sem blindagem (tempo de cada medida igual a 48h)

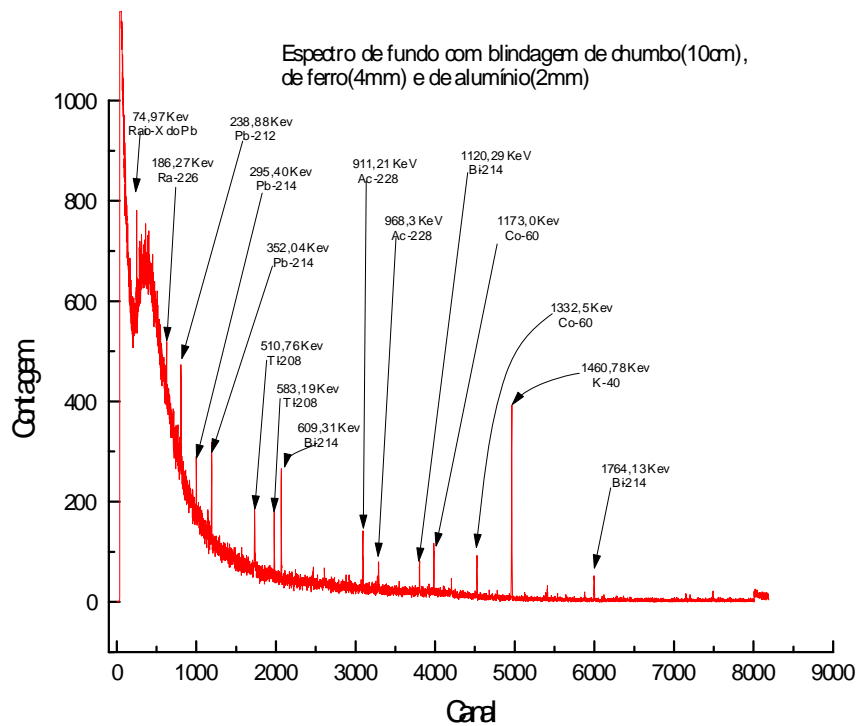


Figura 20 - Espectro de fundo com blindagem de chumbo, ferro e alumínio (tempo de cada medida igual a 48h)

#### 4.1.3.4 Limite mínimo de detecção e atividade mínima detectável

O limite mínimo de detecção de um espectrômetro de raios gama é a medida de sua habilidade em detectar um pico de raio gama na presença de interferência da radioatividade natural e do espalhamento Compton de raios gama de alta energia originados na fonte.

Quando uma amostra é introduzida no detector, o termo usualmente associado com o limite de detecção é a atividade mínima detectável (AMD), que é expressa pela Equação(23), com 95% de confiabilidade (IAEA, 1989).

$$AMD = \frac{\alpha N_{Lmín}}{m t} \quad \text{Equação 23}$$

onde  $\alpha$  é o fator de calibração,  $m$  é a massa da amostra,  $t$  o tempo de contagem e  $N_{Lmín}$  representa a área líquida mínima do espectro medido, dada por:

$$N_{Lmín} = 4,66\sqrt{F_L} \quad \text{Equação 24}$$

onde  $F_L$  é o fundo líquido na região da linha gama de interesse no espectro da amostra considerada.

Como pode ser visto na Equação (23), os fatores que influenciam o limite de detecção são a eficiência de contagem, a quantidade da amostra, o tempo de contagem associado ao fundo e o valor do fundo.

#### 4.1.4 Geometria do sistema

A geometria do sistema de detecção foi definida colocando o detector de GeHP na posição vertical no centro de uma mesa e sobre ele foi colocado o recipiente de detecção. Ao

redor do detector e do recipiente de detecção havia a blindagem de chumbo, ferro e alumínio conforme descrito anteriormente no item 4.1.3.3.

Foi realizado um teste para definir qual a melhor geometria da amostra para medidas, ou seja, qual o melhor tipo de recipiente de detecção a ser utilizado. Para tanto, foram estabelecidas quatro geometrias teste, com as seguintes dimensões, aproximadamente:

- 1) Béquero Marinelli de 2,1 L preenchido totalmente;
- 2) Béquero Marinelli de 2,1 L preenchido até  $\frac{3}{4}$  de sua altura;
- 3) Recipiente de plástico de 300 mL, com 7 cm de diâmetro e 8,5 cm de altura;
- 4) Recipiente de plástico de 350 mL, com bordas cônicas, tendo 9 cm de diâmetro inferior, 10 cm de diâmetro superior e 8 cm de altura.

Foram determinados os espectros líquidos de cada recipiente de detecção preenchido com leite em pó Polly, num intervalo de tempo de 172800 s ou 48 h. Após analisar os espectros, mostrados nas Figuras 22 e 23, chegou-se à conclusão que o béquero Marinelli totalmente preenchido é o que fornece um número de contagens maior em relação às outras geometrias para as medidas e faixa de energia de interesse. Desta forma, a geometria de amostra escolhida foi o béquero Marinelli de 2,1 L de capacidade, que se encaixa perfeitamente, envolvendo todo o detector e cujas especificações estão na Figura 21.

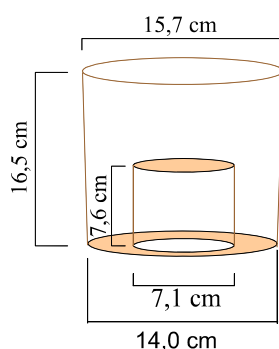


Figura 21 - Esquema com as dimensões de um béquero Marinelli de 2,1 litros

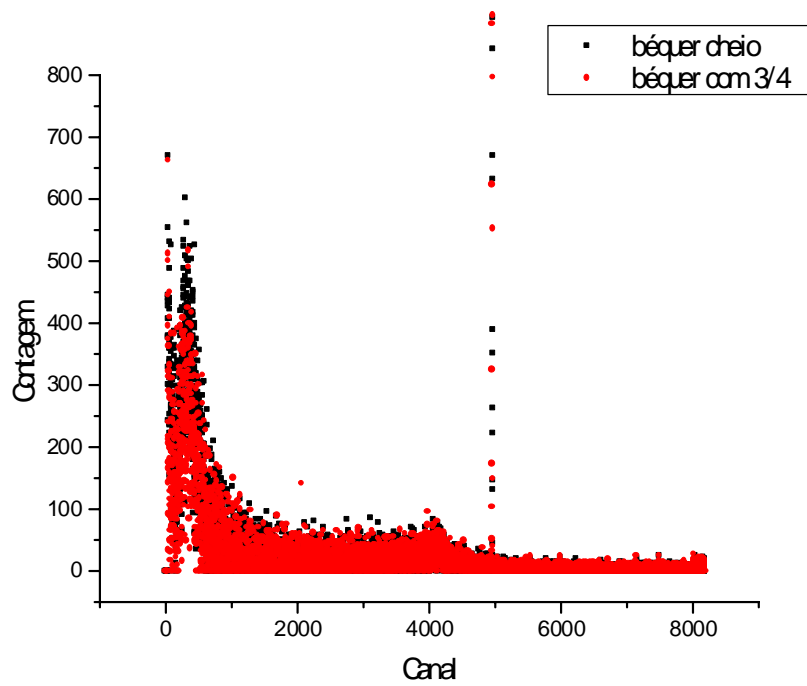


Figura 22 - Espectro comparativo da medida de teste da geometria da amostra entre o béquer Marinelli totalmente preenchido e o béquer Marinelli preenchido até  $\frac{3}{4}$  da altura (tempo de cada medida igual a 48h)

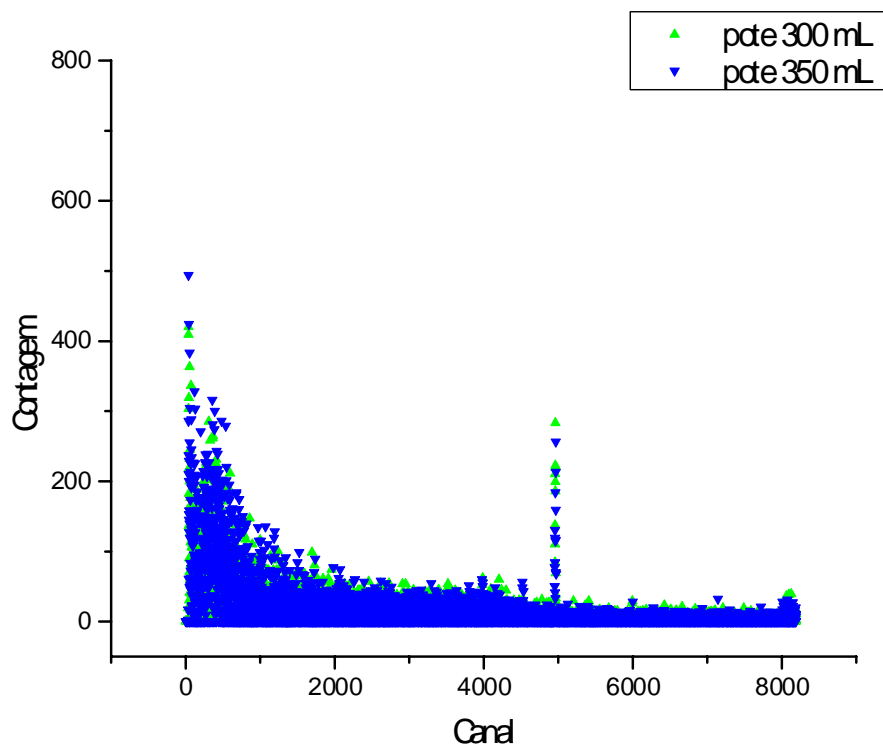


Figura 23 - Espectro comparativo da medida de teste da geometria da amostra entre o pote de 300 mL e o pote de 350 mL, preenchidos totalmente (tempo de cada medida igual a 48h)

Um esquema completo de toda a geometria do sistema, ou seja, posição do detector, geometria da blindagem e geometria da amostra é apresentado na Figura 24.

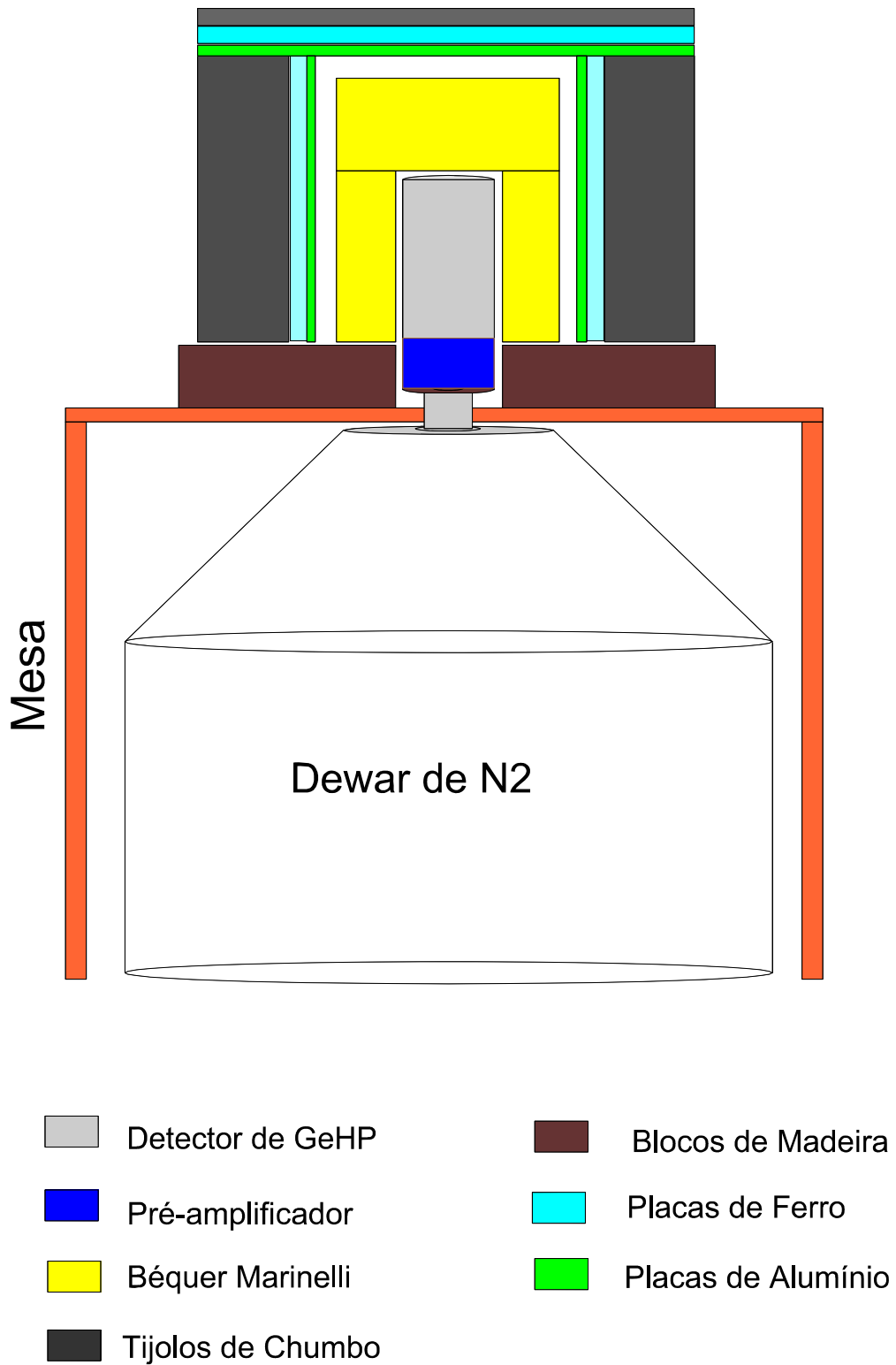


Figura 24 - Esquema da geometria do sistema de medidas

## 4.2 Caracterização, coleta e preparação das amostras

### 4.2.1 Origem das amostras

Foram analisadas duas marcas de leite em pó da região de Londrina-PR. As duas marcas de leite em pó integral usadas foram leite integral Cativa e leite integral Polly , ambas fabricadas em Londrina.

### 4.2.2 Dimensionamento das amostras

Uma das etapas de toda pesquisa científica é determinar o tamanho da amostra que represente uma população. Este dimensionamento é feito através de um procedimento que envolve a inferência estatística.

A inferência estatística pode ser dividida em duas grandes áreas: estimação e testes de hipóteses, que estão diretamente ligadas aos objetivos da pesquisa. A estimação tem por objetivo calcular, através de dados amostrais, alguma estatística proposta como uma aproximação do parâmetro da população. Os testes de hipótese têm por objetivo auxiliar os pesquisadores na tomada de decisão com relação a uma população, examinando uma amostra.

Na fase de planejamento da pesquisa, objetivando a inferência estatística, é necessário estabelecer o tamanho da amostragem ou o número de amostras. Usar uma amostragem

grande, ou seja, além do necessário, pode ser um “desperdício” em relação ao custo, tempo, mão de obra, etc. Por outro lado, uma amostragem pequena poderá conduzir a resultados inadequados, por não representar adequadamente o lote considerado.

No presente trabalho, a determinação do tamanho da amostragem para obtenção da estimativa de determinado parâmetro populacional é desenvolvida a partir dos componentes do intervalo de confiança, dado por (NETER et al., 1990):

$$d = Z \cdot \sigma \quad \text{Equação 25}$$

$d \rightarrow$  é a quantidade de desvios da estimativa em relação ao verdadeiro valor da população

$Z \rightarrow$  é o coeficiente de confiança

$\sigma \rightarrow$  é o erro padrão

No caso de uma média populacional:

$$d = \frac{Z \cdot \sigma}{\sqrt{n}} \quad \text{Equação 26}$$

ou, isolando  $n$ , que é o número de amostras necessárias para se obter um resultado referente a todo o lote de determinada amostra, tem-se:

$$n = \frac{Z^2 \cdot \sigma^2}{d^2} \quad \text{Equação 27}$$

Para realizar este cálculo utilizaram-se dos dados da Tabela 11 a seguir.

Tabela 11 - Valores para medidas de  $^{40}\text{K}$  em leite em pó na Venezuela e materiais de referência certificados (extraída de LaBRECQUE, 1992)

Código da amostra	Concentração de $^{40}\text{K}$ [Bq/kg] $x \pm \text{SD} (n)^a$
X	$329 \pm 20 (6)$
Y	$401 \pm 40 (6)$
Y	$401 \pm 40 (6)$
T	$421 \pm 20 (6)$
W	$440 \pm 30 (6)$
V	$400 \pm 20 (6)$
P1	$423 \pm 40 (6)$
P2	$398 \pm 30 (6)$
A-14 <sup>b</sup>	$541 \pm 30 (6)$
IAEA-321 <sup>b</sup>	$538 \pm 30 (6)$
IAEA-152 <sup>b</sup>	$528 \pm 40 (6)$

<sup>a</sup>  $x$  = média; SD = desvio padrão;  $n$  = número de determinações

<sup>b</sup> Valores corrigidos para datas de referência apropriadas

Foi estabelecido para este trabalho 5% de erro, ou seja, 95% de confiabilidade.

Com isso  $Z$  assume o valor de 1,96 (SUTHERLAND, 1989),  $\sigma$  é o desvio padrão nos dados da Tabela 11 e  $d$  é 5% dos dados da mesma tabela. Os valores obtidos foram calculados usando a Equação (27) e estão dispostos na Tabela 12 a seguir.

Tabela 12 - Valores para o número de amostras necessárias para representar um certo lote de leite em pó com 95% de confiabilidade.

Concentração de $^{40}\text{K}$ [Bq/kg] $X \pm \text{SD} (n)^a$	Número de Amostras ( n )
$329 \pm 20 (6)$	5,64
$401 \pm 40 (6)$	14,63
$401 \pm 40 (6)$	14,63
$421 \pm 20 (6)$	3,32
$440 \pm 30 (6)$	7,14
$400 \pm 20 (6)$	3,84
$423 \pm 40 (6)$	13,74
$398 \pm 30 (6)$	8,73
$541 \pm 30 (6)$	4,73
$538 \pm 30 (6)$	4,78
$528 \pm 40 (6)$	8,82

<sup>a</sup> n é o número de repetições em cada amostra

Desta forma, para um desvio de 5%, o número mínimo de amostras necessárias é 3 e o máximo, de 15 amostras. Com base nestes cálculos e no tempo disponível para as medidas, foi estabelecida a utilização de 6 amostras para representar cada lote de leite a ser medido.

#### 4.2.3 Preparação das amostras

As amostras de leite em pó foram preparadas seguindo certos cuidados para a obtenção de amostras homogêneas e com densidades semelhantes. Portanto, em geral, todas as

amostras feitas para medida de radioatividade natural foram preparadas de maneira análoga, conforme descrito abaixo.

Para se preencher seis béqueres com leite em pó são necessários 21 pacotes de 400 g cada. Todo o lote de leite foi peneirado com uma malha de 0,71 mm. Cada conjunto de 5 ou 6 pacotes era homogeneizado separadamente, em seguida juntado às demais partes e homogeneizado tudo novamente. O processo de homogeneização foi realizado manualmente utilizando uma espátula. Cada etapa de homogeneização durou 30 minutos mexendo a amostra.

De cada amostra foram calculadas a massa e a densidade, especificando a data de fabricação, fabricante, marca e local de origem. Foi medida ainda a umidade média de cada lote de leite empregado. Por fim, as amostras montadas em béquer Marinelli foram lacradas com um filme plástico, tampadas, colocando fita adesiva para que não fossem abertas e guardadas por 40 dias para se atingir o equilíbrio secular, ou seja, para que o gás radônio pudesse decair totalmente antes de iniciar as medidas.

O tempo de repouso da amostra para se atingir o equilíbrio secular é (BACCHI, 1996):

$$t = 8 t_{1/2} \text{ do núcleo filho}$$

Equação 28

Como a meia-vida do radônio é 3,8 dias, o tempo de repouso estabelecido foi suficiente. Maiores detalhes dos procedimentos para preparação de amostras estão nos protocolos do Anexo A.

Na Tabela 13 apresentam-se as características das amostras de leite em pó medidas.

Tabela 13 - Características das amostras de leite em pó preparadas.

Leite	Densidade* (g/cm <sup>3</sup> )	Umidade Nominal	Umidade Medida*	Data de Fabricação
CATIVA	0,554 ± 0,008 <sup>#</sup>	2,8 – 3 %	4,7 ± 0,3 <sup>#</sup> %	30/08/1998
POLLY	0,542 ± 0,007 <sup>#</sup>	3 %	5,2 ± 0,2 <sup>#</sup> %	14/08/1998

\* Valor medido das 6 amostras confeccionadas

<sup>#</sup> Desvio padrão da média

### 4.3 Amostras calibradas

A aquisição dos espectros pela eletrônica nuclear usada fornece a área sob o pico, em contagens, de modo que é necessário obter uma equação de calibração, que relacione a área sob o pico desejado com a atividade deste radionuclídeo na amostra calibrada. Assim, com esta equação de calibração será possível determinar a atividade do radionuclídeo de interesse nas amostras estudadas.

Para se obter a equação de calibração, foram preparadas amostras com diferentes atividades conhecidas de diversos radionuclídeos.

#### 4.3.1 Preparação das amostras calibradas

As amostras calibradas utilizadas foram preparadas usando dois materiais de referência certificados da Agência Internacional de Energia Atômica. Ambos os materiais são solos

identificados como IAEA-375 e IAEA-326. Uma certa quantidade de cada um destes materiais foi misturada com leite em pó para obtenção das amostras calibradas.

Decidiu-se usar os materiais de referência certificados misturados com leite em pó para se ter uma amostra calibrada com as mesmas condições geométricas (tamanho do béquer e altura de preenchimento) e composição química semelhante às amostras que seriam estudadas para que os desvios devidos a estes dois parâmetros pudessem ser desprezados. Assim, uma atenção especial deve ser dada à densidade das amostras, que é um fator importante na auto-absorção e conseqüentemente na eficiência de detecção.

As amostras calibradas foram preparadas misturando-se 50 g de material de referência certificado com o volume de leite em pó necessário para preencher totalmente um béquer Marinelli de 2,1 litros (geometria da amostra usada em todo o trabalho).

Para preparar as amostras calibradas foram utilizados 13 pacotes de 400 g de leite em pó Cativa, peneirados com malha de 0,71 mm. Cada 4 ou 5 pacotes foi homogeneizado manualmente por 30 min. Em seguida, foram sendo juntadas cada parte e homogeneizado por mais 30 min. Com todo o leite já homogeneizado, montou-se um béquer com leite em pó Cativa sem adição de padrões, para ser utilizado como amostra “de fundo” em relação às medidas das amostras de leite com adição de padrões.

A primeira amostra calibrada foi feita com o padrão IAEA-375. Juntaram-se 50 g de leite em pó com 50 g de solo IAEA-375, homogeneizando por 30 min. Em seguida, foram acrescentados mais 100 g de leite em pó e misturou-se por 30 min. Daí por diante foi colocando-se mais leite, dobrando a massa anterior, e homogeneizando por 30 min a cada passo até se

completar o béquer ( 50-50 → 100-100 → 200-200 → 400-400 → 800-restante = béquer cheio ). Foi observada cuidadosamente a estimativa de perda de massa em todo o processo de homogeneização e preenchimento dos béqueres, que foi em torno de 0,3% e, portanto, desprezível frente aos outros desvios. O mesmo procedimento foi realizado para o material de referência certificado IAEA-326.

Foram medidas as massas líquidas de cada amostra e calculadas suas respectivas densidades e atividades a partir dos valores fornecidos pela IAEA. Todas as amostras foram lacradas com filme plástico e guardadas por 40 dias para atingir o equilíbrio secular. Maiores detalhes sobre o processo de preparação ver o Protocolo de Preparação de Amostras Calibradas, no Anexo A. As atividades dos radionuclídeos utilizados para a calibração estão descritas na Tabela 14.

Tabela 14 - Atividade dos radionuclídeos encontrados nas amostras calibradas para data de referência de 01/03/99

Nuclídeo	Atividade da amostra IAEA-375 (Bq/kg)	Atividade da amostra IAEA-326 (Bq/kg)
<sup>40</sup> K	424 ± 34	575 ± 60
<sup>137</sup> Cs	4475 ± 327	117 ± 16
<sup>134</sup> Cs	42 ± 4	

Na preparação das amostras foram tomados todos os cuidados em relação à proteção radiológica através da utilização de monitor de radiação, dosímetro pessoal, luvas de borracha e máscaras descartáveis.

### 4.3.2 Equação de calibração

A atividade de um dado radionuclídeo depende de vários fatores, conforme a equação abaixo (IAEA,295):

$$A = \frac{N_L}{\varepsilon P_\gamma m t} \quad \text{Equação 29}$$

onde:

$A \rightarrow$  é a atividade da amostra em Bq/kg

$N_L \rightarrow$  é o número de contagens líquido medido sob o fotopico

$\varepsilon \rightarrow$  é a eficiência de detecção do sistema (número  $\leq 1$ )

$P_\gamma \rightarrow$  é a probabilidade de transição absoluta por decaimento gama através da energia selecionada para  $\varepsilon$  (número  $\leq 1$ )

$m \rightarrow$  é a massa da amostra em quilogramas

$t \rightarrow$  é o tempo de medida em segundos

O número de contagens depende da eficiência de detecção, que por sua vez, depende da quantidade de radiação que atinge o detector e sua energia. Esta quantidade de radiação depende do fator de absorção, das dimensões e da densidade da amostra. São estes fatores que determinam o fator de calibração que neste trabalho será escrito, para cada linha gama, como:

$$\alpha = \frac{1}{\varepsilon P_\gamma} \quad \text{Equação 30}$$

Substituindo este fator de calibração na Equação(29), obtem-se:

$$\alpha = \frac{m A t}{N_L} \quad \text{Equação 31}$$

que é a equação de calibração que representa a dependência entre a atividade da amostra e a área líquida sob o pico da linha gama medida.

#### 4.4 Amostras com densidade variável

Como será visto mais à frente no item 5.3, a diferença na densidade das amostras ou entre a amostra calibrada e a amostra que se deseja medir é uma das fontes de erro nas medidas, devido à auto-absorção das amostras. Com o objetivo de analisar a influência da densidade na eficiência de detecção foram preparadas 5 amostras com diferentes graus de compactação.

##### 4.4.1 Processo de preparação das amostras com densidade variável

Para preparação das amostras de leite em pó com densidade variável foram utilizados 25 pacotes de 400 g cada de leite em pó integral Cativa. O processo de homogeneização foi realizado como descrito anteriormente na seção 4.2.3. O processo de compactação foi realizado da seguinte maneira: o primeiro béquer foi preenchido cuidadosamente, apenas balançando-o para não ficarem espaços vazios. No segundo béquer, a acomodação do leite foi feita com leves batidas. No terceiro, o grau de compactação foi aumentado dando-se fortes batidas no béquer à medida que

ia sendo preenchido. O quarto e quinto béqueres foram compactados com o auxílio de uma prensa devidamente construída para se encaixar no béquer Marinelli.

Cada uma das amostras foi pesada, lacrada e guardada para atingimento do equilíbrio secular. Maiores detalhes do processo de preparação podem ser vistos no Anexo A. Estas amostras com densidade variável, principalmente a primeira e a segunda, são amostras frágeis e foram tomados os devidos cuidados no manuseio e armazenamento dos béqueres, pois qualquer batida pode alterar a densidade. As densidades obtidas foram, respectivamente, em  $\text{g}/\text{cm}^3$ :  $0,5270 \pm 0,0011$ ,  $0,5880 \pm 0,0012$ ,  $0,6480 \pm 0,0014$ ,  $0,68070 \pm 0,0014$ ,  $0,6880 \pm 0,0015$ .

#### **4.5 Amostras contaminadas**

Foram ainda realizadas medidas em leite em pó contaminados, produzidos na Europa logo após o acidente de Chernobyl. Foram analisadas duas marcas de leite importados: o Dano Milk fabricado em setembro de 1986 na Dinamarca e o Ceteco Milk produzido em outubro de 1986 na Holanda.

#### *4.5.1 Preparação das amostras de leite em pó contaminadas*

Inicialmente foi verificado com um contador Geiger se a dose de radiação estava abaixo do limite máximo de trabalho permissível. Uma vez comprovado isso, o leite foi manipulado normalmente, sendo tomados os devidos cuidados de radioproteção, como a utilização de luvas, máscaras e dosímetro pessoal.

Foi preparado um béquer Marinelli de 2,1 L de cada marca de leite em pó importado, seguindo os processos de homogeneização já citados anteriormente na seção 4.2.3 e com maiores detalhes no item A5 do Anexo A.

## 5. METODOLOGIA DE ANÁLISE

### 5.1. Análise das amostras

As amostras analisadas foram acondicionadas em béqueres Marinelli de 2,1 litros de volume e com massa líquida variando entre 1100 e 1500 g, sendo que a maioria ficou entre 1130 e 1230 g. Foram realizadas 3 medidas de dois dias (172800 s) para cada amostra e para o fundo. Mediu-se também, com uma certa frequência, uma fonte de  $^{152}\text{Eu}$  por 24 h (86400 s), para monitorar a calibração em energia do sistema e verificar se não ocorreu nenhum problema com a eletrônica ou com o próprio detector. As amostras foram analisadas por espectrometria gama e através da medida da área sob o pico e do fator de calibração, obtido da Equação(29), foi calculada a atividade dos radionuclídeos identificados no espectro. A atividade foi calculada de acordo com as normas da IAEA (IAEA, 1989).

#### 5.1.1 Espectrometria gama

A espectrometria gama de alta resolução tem sido utilizada largamente na determinação de radionuclídeos em amostras ambientais, pois é possível determinar os emissores gama diretamente da amostra. Com este método, obtém-se uma identificação qualitativa dos elementos presentes e a quantidade do radionuclídeo na amostra.

No entanto, para se obter uma boa análise espectrométrica, é necessário calibrar o sistema com amostras certificadas ou padrões dos radionuclídeos desejados. É necessário, ainda, ajustar parâmetros de acordo com o tipo de amostra (geometria), equipamentos disponíveis, a composição dos radionuclídeos e a atividade da amostra. O tempo de aquisição de dados varia de acordo com o limite de detecção desejado, com a eficiência de detecção e os radionuclídeos de interesse.

## 5.2 Softwares utilizados

Foi utilizado o software Maestro 3.2 (MCA, 1996), acoplado a uma placa multicanal de hardware específico, que funciona como um multicanal, ou seja, é um instrumento que seleciona e conta eventos em tempo real. As contagens adquiridas são organizadas em um espectro em tempo real. Através do software Maestro 3.2 é possível identificar os picos do espectro, sua energia e radionuclídeo, assim como, utilizando a função ROI obter a área sob o pico desejado. É possível também realizar a subtração de espectros, para obter-se o espectro líquido da amostra.

Utilizou-se ainda do software Spedac (BERNARSONI et al.) para converter os arquivos de espectro .CHN, fornecidos pelo Maestro 3.2, para arquivos .ASC que podem ser transferidos para o software Origin 3.5 (MICROCAL SOFTWARE, 1994) onde foram impressos os espectros. O software Origin 3.5 também foi usado como planilha para calcular as atividades e outras grandezas dos radionuclídeos observados.

Para as análises estatísticas apresentadas foi usado o Software Statistica (STATSOFT, 1995). Para o cálculo do fator de atenuação  $\mu_i^{Al}$ , utilizado na Equação(32), empregou-se o software XCOM (BERGER & HUBBELL, 1997).

### 5.3 Metodologia de medida da eficiência de detecção

A eficiência de detecção do sistema foi medida usando as cinco amostras de leite calibradas, já descritas no item 4.3. Através da equação de calibração, Equação(31), obteve-se o valor de  $\alpha$ , uma vez que a atividade dos radionuclídeos observados nestas amostras eram conhecidas.

A relação do  $\alpha$  com a eficiência é dada de acordo com a Equação(30). Os valores de eficiência calculados a partir dos dados retirados do espectro líquido das duas amostras calibradas preparadas estão na Tabela 15. Os valores de  $P_\gamma$  (probabilidade de transição absoluta por decaimento gama através da energia selecionada para  $\varepsilon$ ) foram retirados do anexo VII da referência IAEA, 1989.

Tabela 15 - Valores medidos da eficiência de detecção para a linha de 1460,8 keV do  $^{40}\text{K}$ 

Valores da Eficiência ( $\epsilon$ )
0,00110 $\pm$ 0,00016
0,00098 $\pm$ 0,00014
0,00087 $\pm$ 0,00013
0,00082 $\pm$ 0,00012
0,00080 $\pm$ 0,00012
<b>Valor Médio</b> <b>0,000914 <math>\pm</math> 0,000056 (6,1%)</b>

A partir dos valores da eficiência de detecção, foi realizada uma análise de como esta eficiência varia com a densidade da amostra, ou seja, um estudo da influência da auto-absorção. Para isso, foram utilizadas as 5 amostras com diferentes graus de compactação, preparadas conforme descrito no item 4.4.

As amostras compactadas tinham valores de densidade entre 0,52 e 0,69 g/cm<sup>3</sup> que se observado na Figura 25, refere-se apenas a um pequeno intervalo de densidade. No entanto, a maioria das amostras preparadas apresentou densidade entre 0,534 $\pm$ 0,001 e 0,569 $\pm$ 0,001 g/cm<sup>3</sup>, ou seja, um intervalo ainda menor.

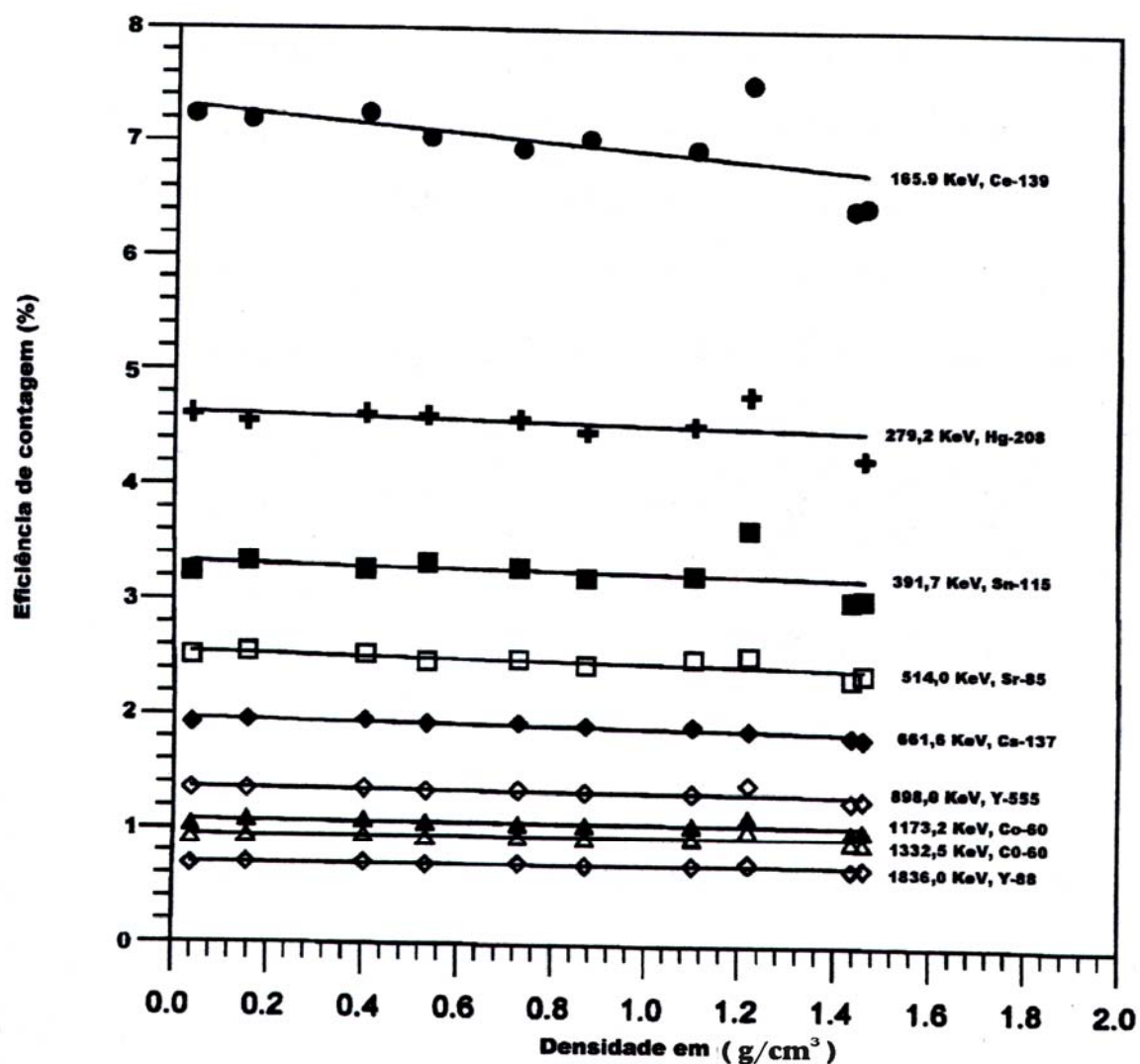


Figura 25 - Dependência da eficiência de contagem com relação à densidade (extraída de TASKAEVA,1996)

Quando comparados estes valores com os das retas da Figura 25, nota-se que para o  $^{40}\text{K}$  (1460,8 keV), cuja energia se situa entre as duas últimas linhas da figura, a variação na eficiência é desprezível. Para o intervalo de densidade de 0 a 2  $\text{g/cm}^3$  apresentado para  $^{60}\text{Co}$  e  $^{88}\text{Y}$ , obteve-se praticamente uma reta sem inclinação, ou seja, não houve variação na eficiência de contagem, o que é mais evidente para o pequeno intervalo de densidade de 0,534 a 0,569. Para o  $^{137}\text{Cs}$ , a reta apresenta uma leve inclinação, sendo notada uma variação de 0,5% na eficiência no intervalo de densidade de interesse.

De acordo com as medidas das 5 amostras compactadas foi possível construir a Figura 26, que mostra o ajuste dos dados deste trabalho para o  $^{40}\text{K}$ . Analisando a variação da eficiência de contagem para o intervalo de densidade de 0,534 a 0,596 g/cm<sup>3</sup>, obteve-se uma diferença de 7%, que é um fator a ser considerado no cálculo da atividade.

No caso do  $^{137}\text{Cs}$ , espera-se também um fator de auto-absorção, no entanto não foi possível construir uma reta deste tipo para o  $^{137}\text{Cs}$  (não foi observado pico de  $^{137}\text{Cs}$  no leite) e o máximo que se pode inferir é o 0,5% citado anteriormente. O fator de correção para auto-absorção do  $^{137}\text{Cs}$  deveria ser maior que o encontrado para o  $^{40}\text{K}$ . Contudo, os desvios encontrados nas medidas de atividade do  $^{137}\text{Cs}$  são da ordem de 20%, ou seja, bem maior que a diferença que se poderia obter com a correção de auto-absorção. Sendo assim, este fator será desprezado para o cálculo da atividade do  $^{137}\text{Cs}$ .

A correção no valor de  $\alpha$  para o  $^{40}\text{K}$ , devido à auto-absorção, foi 0,5%, desprezível quando comparada com o valor de  $\alpha$  que tem um desvio de 17%.

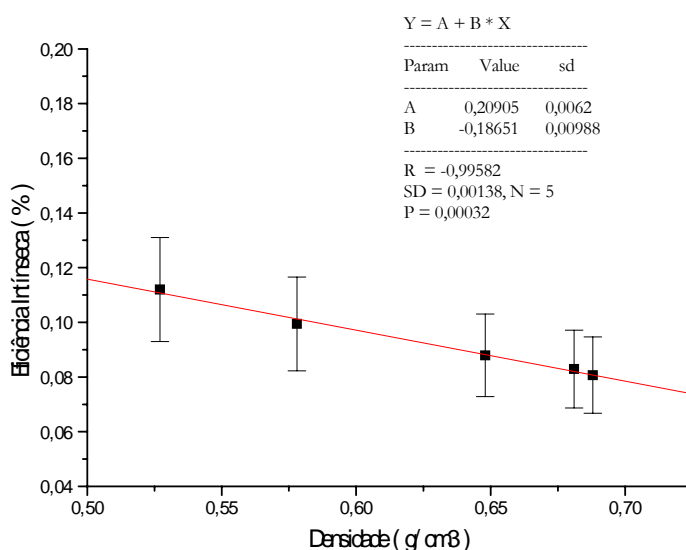


Figura 26 - Dependência da eficiência de contagem com a densidade, obtida com os dados do pico de 1460,8 keV do  $^{40}\text{K}$ .

O fator de auto-absorção foi calculado normalizando para o valor de densidade de  $0,534 \text{ g/cm}^3$ . A Figura 27 mostra a variação do fator de auto-absorção com a densidade para este trabalho, utilizando a linha de  $1460,8 \text{ keV}$  do  $^{40}\text{K}$  para os leites Cativa e Polly.

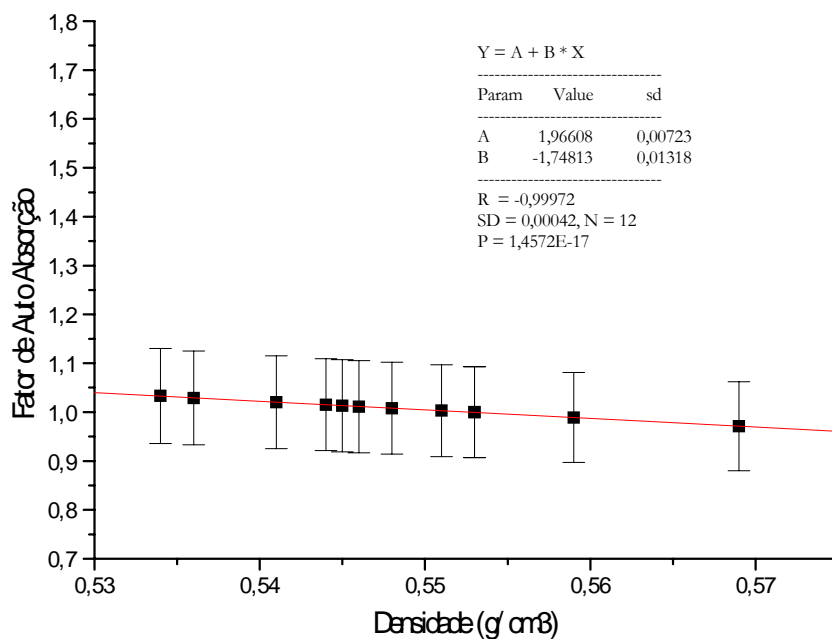


Figura 27 - Variação da auto-absorção com a densidade para a linha de  $1460,8 \text{ keV}$  do  $^{40}\text{K}$  nos leites Cativa e Polly

### 5.3.1 Cálculo da eficiência de detecção utilizando uma fonte de $^{152}\text{Eu}$

Também foi calculada a eficiência de detecção do sistema empregando uma fonte certificada de  $^{152}\text{Eu}$ , tipo pastilha, lacrada em alumínio. Para tanto, colocou-se a fonte sobre um béquer Marinelli de  $2,1 \text{ L}$ , ficando com a geometria mostrada na Figura 28.

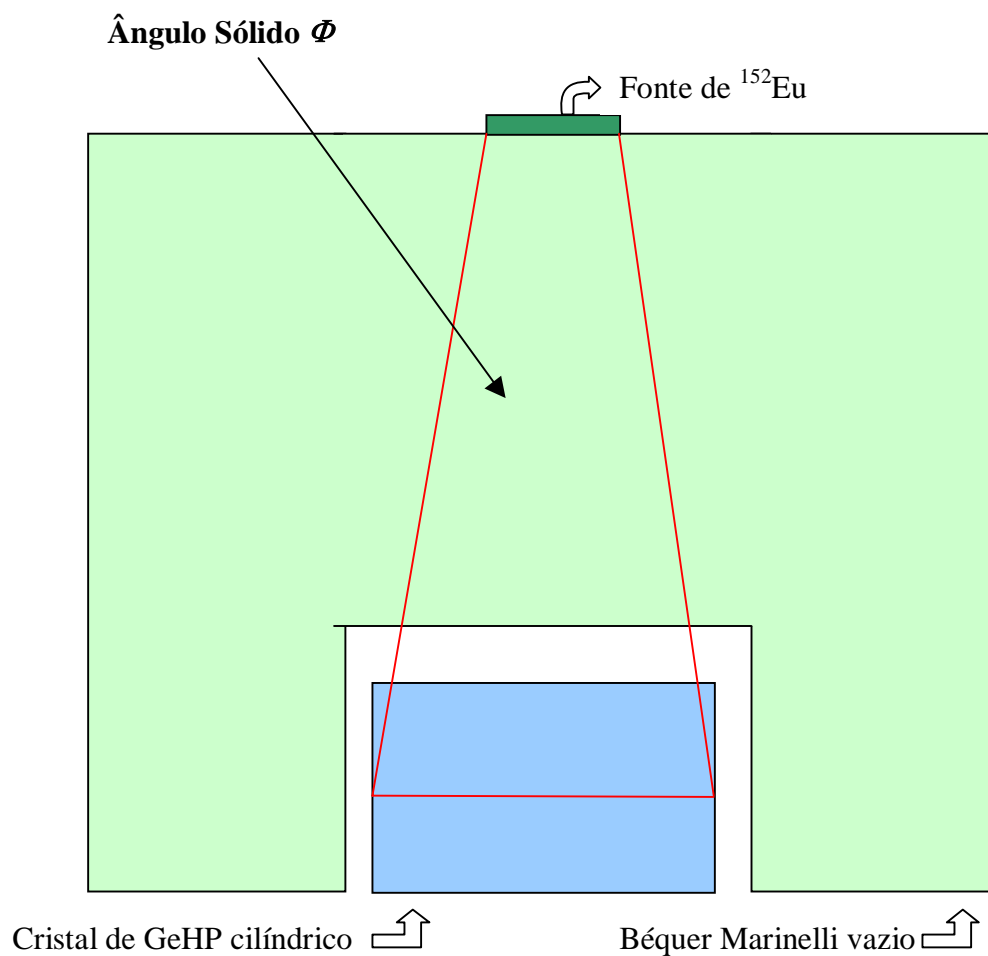


Figura 28 - Geometria de medição da eficiência com a fonte de  $^{152}\text{Eu}$

A atividade da fonte é conhecida, porém é uma fonte que emite radiação em  $4\pi$ , por isso foi necessário calcular a quantidade de radiação que atinge o detector sob o ângulo sólido  $\Phi$  da Figura 28. Este ângulo foi calculado considerando o volume de um tronco de cone com base de uma calota esférica. O valor encontrado para  $\Phi$  foi  $0,046\pi \pm 0,00006\pi$  sr.

A partir do valor de  $\Phi$  obteve-se a atividade incidente no detector. Tendo esta atividade, a eficiência intrínseca  $\varepsilon$  é obtida da relação:

$$\varepsilon_i = \frac{N_{Li}}{A_i P_\gamma t} \cdot \frac{1}{e^{-\mu_i^{Al} x^{Al}}} \cdot f \cdot \tau \quad \text{Equação 32}$$

onde:

$\varepsilon_i$ : eficiência intrínseca para a energia  $i$

$N_{Li}$ : contagem líquida sob o pico de energia  $i$

$A_i$ : atividade sob o ângulo sólido  $\Phi$  em Bq

$P_\gamma$ : probabilidade de transição absoluta por decaimento gama através da energia selecionada para  $\varepsilon$

$t$ : tempo de contagem

$\mu_i^{Al}$ : coeficiente de atenuação do alumínio para a energia  $i$

$x^{Al}$ : espessura da camada de alumínio do detector

$f$ : fator de auto-absorção da capa de alumínio da fonte

$\tau$ : correção para tempo morto

Foi realizada uma medida de um dia com a fonte de  $^{152}\text{Eu}$  nas condições já citadas. Os valores de  $N_{Li}$  foram retirados do espectro líquido usando o software Maestro 3.2 (ver item 5.2). Os valores de  $P_\gamma$  foram retirados do anexo VII da referência (IAEA, 1989). O termo  $e^{\mu_i^{Al} x^{Al}}$  fornece a atenuação sofrida pelo raio gama na camada de alumínio da fonte. Os valores de  $\mu_i^{Al}$  foram calculados com auxílio do software X-COM. O fator de auto-absorção  $f$  foi obtido do certificado da fonte fornecido pela IAEA (SET OF 8 CALIBRATED GAMMA-EMITTING SOURCES, 1982).

Com todos estes dados, calculou-se a eficiência do sistema para cada pico de energia observado, obtendo-se o gráfico apresentado na Figura 29.

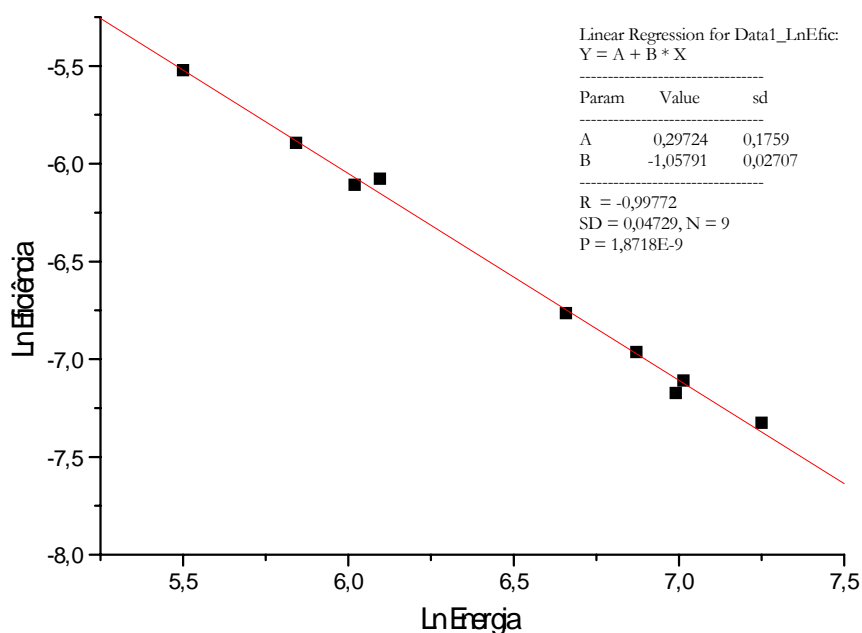


Figura 29 - Gráfico de eficiência intrínseca versus energia para a fonte de  $^{152}\text{Eu}$

### 5.3.2 Cálculo da eficiência de detecção do $^{208}\text{Tl}$

Nos espectros das amostras de leite Cativa e Polly foram encontrados, embora em pequena quantidade, traços do  $^{208}\text{Tl}$  da cadeia radioativa natural do  $^{232}\text{Th}$ . Para se calcular sua atividade utilizou-se da equação da reta da Figura 29, uma vez que nas amostras calibradas não foi detectado este nuclídeo impossibilitando o cálculo direto do fator de calibração  $\alpha$ .

Assim através da equação da reta da Figura 29, obteve-se  $\varepsilon$  para a energia correspondente e conseqüentemente, pela Equação(30), o valor de  $\alpha$ . Substituindo  $\alpha$  na Equação(29) juntamente com os demais dados foi possível calcular a atividade do  $^{208}\text{Tl}$ .

A atividade do  $^{232}\text{Th}$  (cabeça da cadeia natural) e de todos os outros núclídeos da cadeia do Tório anteriores ao  $^{208}\text{Tl}$  tem o mesmo valor, devido aos radionuclídeos estarem em equilíbrio secular.

## 6. RESULTADOS OBTIDOS E DISCUSSÃO

A atividade dos radionuclídeos encontrados na amostra foi calculada de acordo com a equação:

$$A = \frac{\alpha N_L f}{m t} \quad \text{Equação 33}$$

onde  $A$  é a atividade do radionuclídeo de interesse,  $t$  é o tempo de contagem (172800 s = 2 dias),  $m$  é a massa da amostra,  $N_L$  é a área líquida sob o pico do radionuclídeo analisado,  $f$  é o fator de auto-absorção obtido a partir das amostras compactadas, conforme item 5.3 e cujos valores estão listados na Tabela 16,  $\alpha$  é o fator de calibração que foi calculado a partir das amostras calibradas. Os valores encontrados para o fator de calibração estão apresentados na Tabela 17.

Tabela 16 - Fator de auto-absorção para linha de 1460,8 keV do  $^{40}\text{K}$ .

Leite	Amostra	Densidade ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	Fator de auto-absorção
Polly	1	$0,544 \pm 0,001$	$1,015 \pm 0,094$
Polly	2	$0,553 \pm 0,001$	$1,000 \pm 0,093$
Polly	3	$0,536 \pm 0,001$	$1,029 \pm 0,096$
Polly	4	$0,545 \pm 0,001$	$1,013 \pm 0,094$
Polly	5	$0,541 \pm 0,001$	$1,020 \pm 0,095$
Polly	6	$0,534 \pm 0,001$	$1,033 \pm 0,097$
Cativa	1	$0,553 \pm 0,001$	$1,000 \pm 0,093$
Cativa	2	$0,559 \pm 0,001$	$0,989 \pm 0,092$
Cativa	3	$0,569 \pm 0,001$	$0,971 \pm 0,091$
Cativa	4	$0,546 \pm 0,001$	$1,011 \pm 0,094$
Cativa	5	$0,551 \pm 0,001$	$1,003 \pm 0,094$
Cativa	6	$0,548 \pm 0,001$	$1,008 \pm 0,094$

Tabela 17 - Valores médios do coeficiente de calibração  $\alpha$ 

Nuclídeo/Energia	$\alpha_{\text{med}}$	N
Cs-134 (604,5 keV)	$5748 \pm 1358$ (23,6%)	2
Cs-137 (661,22 keV)	$8089 \pm 1378$ (17,0%)	3
Cs-134 (794,88 keV)	$10117 \pm 3377$ (33,4%)	2
K-40 (1460,8 keV)	$8366 \pm 1418$ (16,9%)	3

Foi possível identificar claramente no espectro das amostras de leite a linha de 1460,8 keV do  $^{40}\text{K}$  e com dificuldade, devido à baixa atividade, a linha de 661,22 keV do  $^{137}\text{Cs}$  e de 2614,47 keV do  $^{208}\text{Tl}$ . Ainda assim muitos dos valores encontrados para o  $^{137}\text{Cs}$  e para o  $^{208}\text{Tl}$  apresentaram desvios maiores que as próprias medidas e foram descartados.

Os valores de atividades e atividades mínimas detectáveis para o  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{208}\text{Tl}$  nos leites Cativa e Polly estão apresentados nas Tabelas 18 a 23.

Tabela 18 - Resultados das atividades do leite integral Cativa para o  $^{40}\text{K}$  (1460,8 keV)

Amostra	Atividade (Bq/kg)	Atividade Média (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável Média (Bq/kg)
Amostra 1	467 ± 91	463 ± 10	2,67 ± 0,61	2,53 ± 0,31
	470 ± 91		2,17 ± 0,51	
	451 ± 88		2,74 ± 0,62	
Amostra 2	463 ± 90	460 ± 3	2,13 ± 0,50	2,37 ± 0,40
	457 ± 89		2,83 ± 0,64	
	460 ± 89		2,14 ± 0,51	
Amostra 3	479 ± 93	454 ± 26	---	2,17 ± 0,63
	456 ± 89		2,61 ± 0,60	
	428 ± 83		1,72 ± 0,42	
Amostra 4	456 ± 89	467 ± 13	3,05 ± 0,69	2,64 ± 0,37
	482 ± 94		2,35 ± 0,55	
	463 ± 90		2,51 ± 0,58	
Amostra 5	480 ± 93	471 ± 8	3,12 ± 0,70	2,64 ± 0,42
	467 ± 91		2,50 ± 0,58	
	467 ± 91		2,31 ± 0,54	
Amostra 6	469 ± 91	467 ± 3	2,79 ± 0,64	2,36 ± 0,51
	468 ± 91		2,50 ± 0,58	
	463 ± 90		1,80 ± 0,44	
<b>Média</b>	<b>464 ± 12*</b>		<b>2,45 ± 0,40*</b>	

--- não foi possível determinar a atividade mínima detectável

\* desvio padrão

Tabela 19 - Resultados das atividades do leite integral Cativa para o  $^{137}\text{Cs}$  (661,22 keV)

Amostra	Atividade (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável Média (Bq/kg)
Amostra 1	$10,60 \pm 7,70$	$1,02 \pm 0,27$	$2,74 \pm 1,51$
	---	$3,83 \pm 0,76$	
	---	$3,38 \pm 0,68$	
Amostra 2	---	$4,04 \pm 0,79$	$4,03 \pm 0,92$
	---	$3,10 \pm 0,63$	
	---	$4,95 \pm 0,95$	
Amostra 3	---	$3,13 \pm 0,64$	$3,72 \pm 0,65$
	---	$4,41 \pm 0,86$	
	---	$3,62 \pm 0,72$	
Amostra 4	---	$3,15 \pm 0,64$	$3,68 \pm 0,57$
	---	$4,28 \pm 0,84$	
	---	$3,61 \pm 0,72$	
Amostra 5	$6,70 \pm 5,70$	$2,29 \pm 0,49$	$3,55 \pm 1,10$
	---	$4,30 \pm 0,84$	
	---	$4,06 \pm 0,80$	
Amostra 6	$8,03 \pm 6,10$	$1,20 \pm 0,30$	$3,07 \pm 1,62$
	---	$3,93 \pm 0,78$	
	---	$4,07 \pm 0,80$	
<b>Média</b>	<b><math>8,44 \pm 1,98^*</math></b>	<b><math>3,46 \pm 1,05^*</math></b>	

--- não foi possível determinar a atividade ou o desvio na medida era maior que a atividade da amostra.

\* desvio padrão

Tabela 20 - Resultados das atividades do leite integral Cativa para o  $^{208}\text{Tl}$  (2614,47 keV)

Amostra	Atividade (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável Média (Bq/kg)
Amostra 1	$1,93 \pm 1,60$	$0,35 \pm 0,16$	$0,50 \pm 0,13$
	---	$0,61 \pm 0,24$	
	---	$0,53 \pm 0,22$	
Amostra 2	$1,88 \pm 1,56$	$0,34 \pm 0,16$	$0,43 \pm 0,12$
	---	$0,38 \pm 0,17$	
	---	$0,57 \pm 0,23$	
Amostra 3	$3,31 \pm 2,04$	$0,57 \pm 0,23$	$0,57 \pm 0,15$
	---	$0,42 \pm 0,18$	
	---	$0,71 \pm 0,27$	
Amostra 4	$3,45 \pm 2,12$	$0,35 \pm 0,16$	$0,33 \pm 0,06$
	---	$0,38 \pm 0,17$	
	$1,62 \pm 1,46$	$0,26 \pm 0,13$	
Amostra 5	$1,98 \pm 1,60$	$0,65 \pm 0,25$	$0,61 \pm 0,19$
	$1,83 \pm 1,55$	$0,41 \pm 0,18$	
	---	$0,78 \pm 0,29$	
Amostra 6	$2,49 \pm 1,81$	$0,38 \pm 0,17$	$0,33 \pm 0,16$
	---	$0,16 \pm 0,08$	
	---	$0,46 \pm 0,20$	
<b>Média</b>	<b><math>2,31 \pm 0,70^*</math></b>	<b><math>0,46 \pm 0,16^*</math></b>	

--- não foi possível determinar a atividade ou o desvio na medida era maior que a atividade da amostra

\* desvio padrão

Tabela 21 - Resultados das atividades do leite integral Polly para o  $^{40}\text{K}$  (1460,8 keV)

Amostra	Atividade (Bq/kg)	Atividade Média (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável Média (Bq/kg)
Amostra 1	454 ± 88	454 ± 6	2,39 ± 0,56	1,54 ± 0,74
	460 ± 89		1,09 ± 0,30	
	449 ± 87		1,14 ± 0,31	
Amostra 2	454 ± 88	447 ± 6	2,92 ± 0,44	1,96 ± 0,83
	443 ± 86		1,43 ± 0,37	
	445 ± 86		1,53 ± 0,39	
Amostra 3	458 ± 89	453 ± 14	2,36 ± 0,31	2,36 ± 0,69
	463 ± 90		1,67 ± 0,42	
	437 ± 85		3,05 ± 0,48	
Amostra 4	461 ± 89	451 ± 9	2,13 ± 0,51	1,63 ± 0,75
	445 ± 86		1,99 ± 0,48	
	447 ± 87		0,76 ± 0,05	
Amostra 5	450 ± 87	454 ± 16	2,45 ± 0,57	1,20 ± 0,73
	440 ± 85		2,39 ± 0,56	
	472 ± 92		1,15 ± 0,10	
Amostra 6	467 ± 91	453 ± 13	2,32 ± 0,55	1,77 ± 1,04
	451 ± 88		0,57 ± 0,19	
	442 ± 86		2,42 ± 0,57	
<b>Média</b>	<b>452 ± 10*</b>		<b>1,88 ± 0,73*</b>	

\* desvio padrão

Tabela 22 - Resultados das atividades do leite integral Polly para o  $^{137}\text{Cs}$  (661,22 keV)

Amostra	Atividade (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável Média (Bq/kg)
Amostra 1	$4,80 \pm 4,70$	$2,49 \pm 0,53$	$3,14 \pm 0,57$
	---	$3,37 \pm 0,68$	
	---	$3,56 \pm 0,71$	
Amostra 2	---	$3,68 \pm 0,73$	$3,35 \pm 0,31$
	---	$3,06 \pm 0,63$	
	---	$3,31 \pm 0,67$	
Amostra 3	---	$2,52 \pm 0,53$	$3,26 \pm 0,76$
	---	$4,04 \pm 0,80$	
	---	$3,23 \pm 0,66$	
Amostra 4	$6,95 \pm 5,56$	$1,96 \pm 0,44$	$2,77 \pm 0,70$
	---	$3,25 \pm 0,66$	
	---	$3,09 \pm 0,63$	
Amostra 5	---	$2,43 \pm 0,52$	$3,10 \pm 0,86$
	---	$2,79 \pm 0,58$	
	---	$4,07 \pm 0,80$	
Amostra 6	---	$4,24 \pm 0,83$	$3,52 \pm 0,81$
	---	$2,64 \pm 0,56$	
	---	$3,69 \pm 0,74$	
<b>Média</b>	<b><math>5,88 \pm 1,52^*</math></b>	<b><math>3,19 \pm 0,63^*</math></b>	

--- não foi possível determinar a atividade, ou o desvio na medida era maior que a atividade da amostra

\* desvio padrão

Tabela 23 - Resultados das atividades do leite integral Polly para o  $^{208}\text{Tl}$  (2614,47 keV)

Amostra	Atividade (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável (Bq/kg)	Atividade Mínima Detectável Média (Bq/kg)
Amostra 1	---	---	0,14 ± 0,08
	2,28 ± 1,75	---	
	---	0,14 ± 0,08	
Amostra 2	2,18 ± 1,7	0,24 ± 0,12	0,32 ± 0,11
	---	0,39 ± 0,17	
	---	---	
Amostra 3	---	0,26 ± 0,13	0,26 ± 0,13
	---	---	
	---	---	
Amostra 4	---	0,21 ± 0,11	0,38 ± 0,14
	3,38 ± 2,12	0,45 ± 0,12	
	1,52 ± 1,41	0,47 ± 0,20	
Amostra 5	---	0,45 ± 0,19	0,41 ± 0,10
	---	0,48 ± 0,20	
	---	0,30 ± 0,14	
Amostra 6	1,75 ± 1,54	0,14 ± 0,08	0,27 ± 0,12
	---	0,37 ± 0,17	
	---	0,31 ± 0,15	
<b>Média</b>	<b>2,22 ± 0,72*</b>	<b>0,32 ± 0,12*</b>	

--- não foi possível determinar a atividade, ou a atividade mínima detectável ou o desvio na medida era maior que a atividade da amostra

\* desvio padrão

A média das atividades para o  $^{137}\text{Cs}$ , para as amostras das duas marcas de leite, tem um desvio da ordem da medida e está muito próximo, senão abaixo do limite mínimo de detecção, conforme as Tabelas 19 e 22, por isso foi muito difícil de ser observada.

## 6.1 Análise estatística dos resultados

Como foram preparadas 6 amostras de cada marca de leite em pó e repetidas 3 medidas para cada amostra, obteve-se um total de 18 medidas para cada lote de leite em pó. A fim de verificar a equivalência entre estas 18 medidas foram aplicados testes estatísticos utilizando o software Statistica citado no item 5.2. Os resultados obtidos para o Leite Cativa e para o Leite Polly podem ser vistos, de uma forma resumida, nas Tabelas 24 e 25. Nestas tabelas o valor da repetitividade  $r$  indica a qualidade das medidas, ou seja, estabelece o limite no qual as medidas realizadas no mesmo equipamento, num intervalo pequeno de tempo e pelo mesmo operador, podem ser consideradas equivalentes. Analisando os valores obtidos, nota-se que eles são menores que 10%, no caso do  $^{40}\text{K}$ , comprovando a qualidade das medidas.

Tabela 24 - Resultados estatísticos das atividades das amostras do leite em pó Cativa.

LEITE CATIVA						
Nuclídeo	Atividade $^{40}\text{K}$	AMD $^{40}\text{K}$	Atividade $^{137}\text{Cs}$	AMD $^{137}\text{Cs}$	Atividade $^{208}\text{Tl}$	AMD $^{208}\text{Tl}$
N	18	17	3	18	8	18
Média (Bq/kg)	464	2,45	8,44	3,46	2,31	0,46
$S_r$ (Bq/kg)	12	0,40	1,98	1,05	0,70	0,16
$RSD_r$	2,59%	16,3%	23,5%	30,3%	30,3%	34,8%
r (Bq/kg)	33,60	1,12	5,54	0,14	6,47	0,45

AMD: atividade mínima detectável

N: número de determinações

$S_r$ : desvio Padrão

$RSD_r$ : desvio padrão relativo de repetitividade

r: repetitividade =  $2,8 \cdot S_r$

Tabela 24b - Resultados Estatísticos das Atividades dos Leites em Pó Cativa em massa seca.

LEITE CATIVA						
Nuclídeo	Atividade $^{40}\text{K}$	AMD $^{40}\text{K}$	Atividade $^{137}\text{Cs}$	AMD $^{137}\text{Cs}$	Atividade $^{208}\text{Tl}$	AMD $^{208}\text{Tl}$
N	18	17	3	18	8	18
Média (Bq/Kg)	489	2,59		3,65		0,48
$S_r$ (Bq/Kg)	13	0,42		1,11		0,17
$RSD_r$	2,65%	16,2%		30,4%		35,4%
r (Bq/Kg)	36,4	1,18		3,11		0,47

AMD: Atividade Mínima Detectável

N: número de determinações

$S_r$ : Desvio Padrão

$RSD_r$ : Desvio padrão relativo de repetitividade

r: repetitividade =  $2,8 \cdot S_r$

Tabela 25 - Resultados estatísticos das atividades das amostras do leite em pó Polly.

LEITE POLLY						
Nuclídeo	Atividade $^{40}\text{K}$	AMD $^{40}\text{K}$	Atividade $^{137}\text{Cs}$	AMD $^{137}\text{Cs}$	Atividade $^{208}\text{Tl}$	AMD $^{208}\text{Tl}$
N	18	18	2	18	5	13
Média (Bq/kg)	452	1,88	5,88	3,19	2,22	0,32
$S_r$ (Bq/kg)	10	0,73	1,52	0,63	0,72	0,12
$RSD_r$	2,21%	38,8%	25,9%	19,7%	32,4%	37,5 %
r (Bq/kg)	28	2,04	4,26	1,76	6,22	0,34

AMD: atividade mínima detectável

N: número de determinações

 $S_r$ : desvio Padrão $RSD_r$ : desvio padrão relativo de repetitividader: repetitividade =  $2,8 \cdot S_r$ 

Tabela 25b - Resultados Estatísticos das Atividades dos Leites em Pó Polly em massa seca.

LEITE POLLY						
Nuclídeo	Atividade $^{40}\text{K}$	AMD $^{40}\text{K}$	Atividade $^{137}\text{Cs}$	AMD $^{137}\text{Cs}$	Atividade $^{208}\text{Tl}$	AMD $^{208}\text{Tl}$
N	18	18	2	18	5	13
Média (Bq/Kg)	475	1,97		3,35		0,34
$S_r$ (Bq/Kg)	12	0,76		0,66		0,13
$RSD_r$	2,53%	38,6%		19,7%		38,2 %
r (Bq/Kg)	33,6	2,13		1,85		0,36

AMD: Atividade Mínima Detectável

N: número de determinações

 $S_r$ : Desvio Padrão $RSD_r$ : Desvio padrão relativo de repetitividader: repetitividade =  $2,8 \cdot S_r$

Inicialmente analisou-se a normalidade entre os dados, uma vez que sua existência é um pressuposto para aplicação de testes estatísticos. Sendo assim, conforme mostram as Figuras 30 e 31, foi verificada a normalidade dos dados nos leites Cativa e Polly para o  $^{40}\text{K}$ . Baseado nesta condição, aplicou-se o teste de comparação de médias de Tukey nos valores de atividades e encontrou-se uma equivalência, ou seja, para um nível de confiabilidade de 95%, os valores das 18 medidas de atividade, de cada marca de leite podem ser considerados iguais dentro dos desvios.

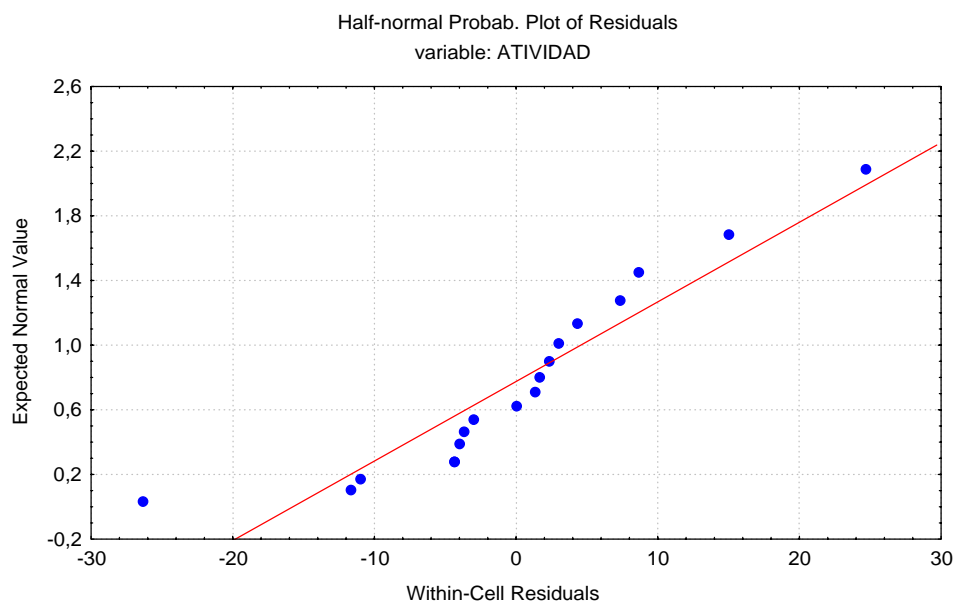


Figura 30 - Gráfico que mostra a normalidade entre as 18 medidas do leite Cativa para o  $^{40}\text{K}$

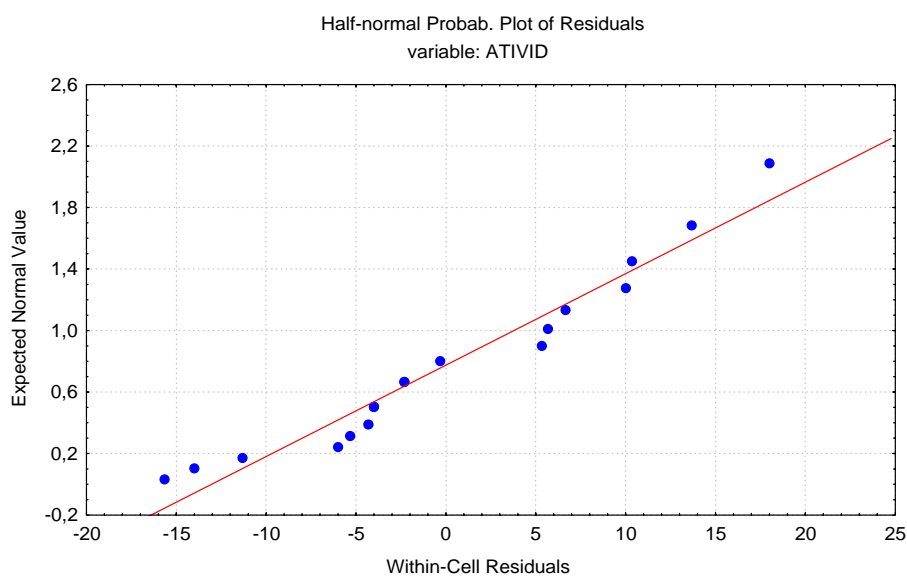


Figura 31 - Gráfico que mostra a normalidade entre as 18 medidas do leite Polly para o  $^{40}\text{K}$

Para os valores de atividade de  $^{137}\text{Cs}$  e de  $^{208}\text{Tl}$ , não tem sentido a aplicação deste teste pois o número de resultados é insuficiente, além de existir muita variabilidade entre as medidas e desvios enormes, como foi visto nos resultados já apresentados.

Outro teste realizado foi para verificar se havia correlação entre o desvio padrão e a média, o que indicaria a existência de desvios sistemáticos ou do tipo B. Conforme as Figuras 32 e 33, nota-se que os pontos estão espalhados e o valor da correlação  $r$  é pequeno. Isso confirma a não correlação entre as médias, ou seja, as medidas não apresentaram desvios sistemáticos significativos.

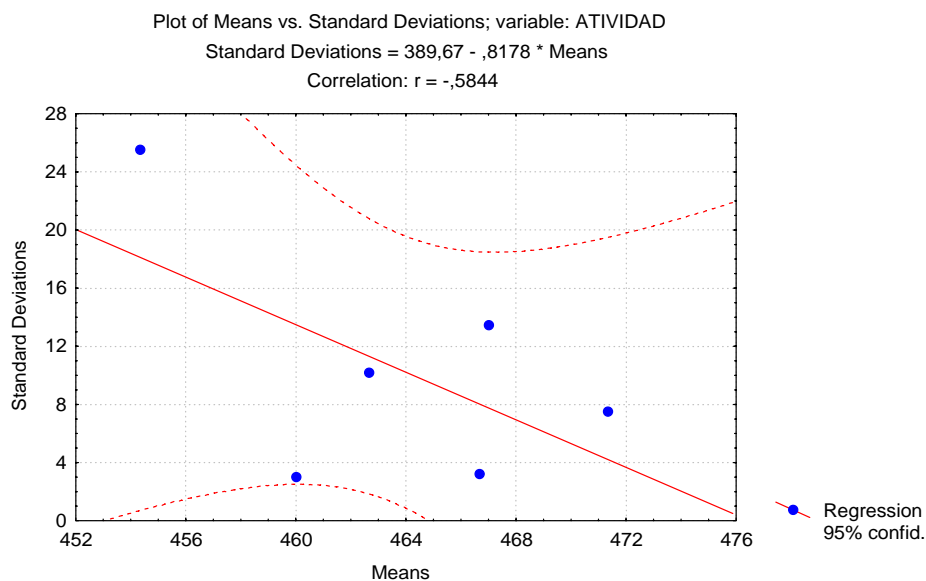


Figura 32 - Gráfico de correlação entre os desvios padrões e as médias para as 6 amostras de leite Cativa para o  $^{40}\text{K}$

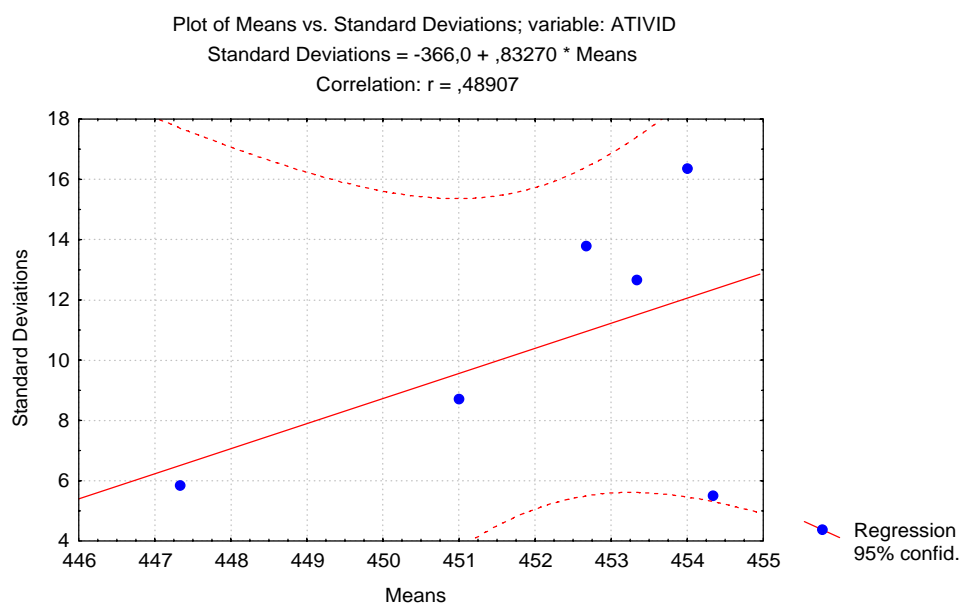


Figura 33 - Gráfico de correlação entre os desvios padrões e as médias para as 6 amostras de leite Polly para o  $^{40}\text{K}$

## 6.2 Resultados para as marcas de leite contaminado

Também foram realizadas medidas com duas marcas de leite em pó contaminado com o acidente de Chernobyl, Dano Milk e Ceteco Milk, onde pôde-se identificar claramente a presença de  $^{40}\text{K}$  e  $^{137}\text{Cs}$  nas amostras e com muita dificuldade ainda o  $^{134}\text{Cs}$ . Os valores das atividades para estas amostras de leite contaminado encontram-se na Tabela 26. Um espectro comparativo entre o leite contaminado e as marcas Cativa e Polly pode ser visto na Figura 34.

Tabela 26 - Resultados das medidas de leite contaminado

Nuclídeo/Energia (keV)	Atividade Média (Bq/kg)	Atividade Mínima detectável (Bq/kg)	Leite Importado
$^{134}\text{Cs} - 604,6$	---	$2,57 \pm 1,26$	Dano Milk
$^{137}\text{Cs} - 661,2$	$560 \pm 4$	$4,17 \pm 0,60$	Dano Milk
$^{134}\text{Cs} - 794,5$	---	$5,68 \pm 0,69$	Dano Milk
$^{40}\text{K} - 1460,8$	$479 \pm 6$	$2,11 \pm 0,33$	Dano Milk
$^{134}\text{Cs} - 604,6$	---	$3,62 \pm 1,09$	Ceteco Milk
$^{137}\text{Cs} - 661,2$	$169 \pm 8$	$6,52 \pm 1,18$	Ceteco Milk
$^{134}\text{Cs} - 794,5$	---	$8,26 \pm 2,32$	Ceteco Milk
$^{40}\text{K} - 1460,8$	$651 \pm 20$	$4,33 \pm 0,63$	Ceteco Milk

--- não foi possível determinar a atividade.

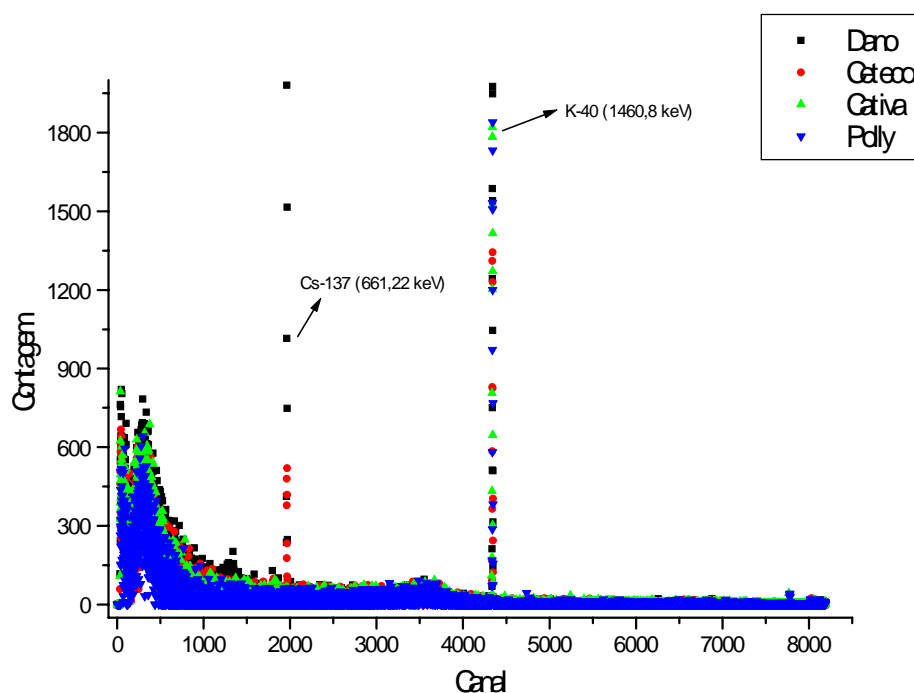


Figura 34 - Espectro comparativo entre as amostras de leite contaminado e as marcas Cative e Polly.

### 6.3. Comparação com resultados da literatura

Foram encontrados alguns artigos na literatura com resultados de atividades para o  $^{40}\text{K}$  e para o  $^{137}\text{Cs}$  e utilizados para comparar com os resultados deste trabalho.

Para comparação dos resultados do  $^{137}\text{Cs}$ , utilizou-se do valor obtido para a atividade mínima detectável (AMD) nas medidas dos leites Cative e Polly, pois são resultados mais confiáveis, uma vez que os valores de atividade são médias de apenas dois ou três valores, conforme as Tabelas 24 e 25.

Alguns dos resultados encontrados na literatura estão em Bq/L. Devido a isso transformou-se o valor obtido em Bq/kg para Bq/L de acordo com o dado que para produzir 1 kg de leite em pó são necessários 8,5 L de leite in natura (CONFEPAR).

A Tabela 27 mostra a comparação dos resultados deste trabalho com os da literatura, para as atividades de  $^{40}\text{K}$  e  $^{137}\text{Cs}$  em amostras de leite em pó. Com relação aos dados para o  $^{40}\text{K}$ , considerando os valores para as marcas de leite brasileira Duleit, Itambé e Glória, nota-se que estão um pouco acima dos valores encontrados para os leites Cativa e Polly. Já considerando o leite irlandês Klim e as amostras certificadas da Agência Internacional de Energia Atômica, A-14 e A-7, a atividade ficou na faixa de 362,12 a 514,94 Bq/kg, que abrange os valores encontrados para os leites Cativa e Polly.

Considerando os dados para as diferentes marcas de leite venezuelanas encontradas nesta Tabela, os valores para a atividade do  $^{40}\text{K}$  variam de  $329 \pm 20$  a  $440 \pm 30$  Bq/kg, que são inferiores aos encontrados para as marcas Cativa e Polly, porém bastante próximos e alguns deles, dentro dos desvios, podem ser considerados equivalentes. No caso do  $^{137}\text{Cs}$ , o valor apresentado para os leites Cativa e Polly são as atividades mínimas detectáveis, que são em geral o dobro dos valores encontrados para as marcas de leite da Venezuela, que por empregarem um sistema melhor de medidas (GeHP de 25% de eficiência relativa) obtiveram valores menores para as atividades mínimas de detecção.

Tabela 27 - Resultados das atividades de  $^{40}\text{K}$  e  $^{137}\text{Cs}$  obtidos por espectrometria gama em amostras de leite em pó.

Marca do Leite	Atividade do $^{40}\text{K}$ (Bq/kg)	Atividade do $^{137}\text{Cs}$ (Bq/kg)
<sup>a</sup> A-14	514,94	
<sup>a</sup> A-7	509,17	
<sup>a</sup> Itambé	492,89	
<sup>a</sup> Duleit	490,52	
<sup>a</sup> Glória	514,28	
<sup>a</sup> Klim	362,16	
<sup>b</sup> La Campiña	329 ± 20	1,43 ± 0,4
<sup>b</sup> La Pradera	401 ± 40	1,66 ± 0,4
<sup>b</sup> Indosa	440 ± 30	1,33 ± 0,4
<sup>b</sup> Popular 1	423 ± 40	0,98 ± 0,3
<sup>b</sup> Popular 2	398 ± 30	1,38 ± 0,3
<sup>b</sup> Camprolac	421 ± 20	1,83 ± 0,4
<sup>b</sup> Rika	400 ± 20	2,21 ± 0,5
POLLY	<b>452 ± 10</b>	<b>°3,19 ± 0,63</b>
CATIVA	<b>464 ± 12</b>	<b>°3,46 ± 1,05</b>

<sup>a</sup> De NADAI et al, 1988<sup>b</sup> LaBRECQUE et al, 1992<sup>c</sup> Atividade Mínima Detectável

A Tabela 28 mostra a comparação dos resultados da literatura para o  $^{137}\text{Cs}$  em leite in natura e a Tabela 29, os resultados para o  $^{137}\text{Cs}$  em Bq/L para as atividades deste trabalho. Os seis primeiros valores da coluna 1 da Tabela 28 representam medidas em alguns estados brasileiros nos anos de 1981 a 1983 e estão bem abaixo das atividades mínimas detectáveis encontradas neste trabalho. Os três últimos valores são as atividades anuais na Argentina (1980), Chile (1979) e Peru (1980), respectivamente. A segunda e terceira colunas mostram resultados de

dois laboratórios diferentes, que analisaram amostras provenientes de algumas fazendas da região de Angra dos Reis – RJ, variando de  $0,14 \pm 0,17$  a  $0,42 \pm 0,29$  Bq/L abrangendo os valores de atividade mínima detectável para os leites Cativa e Polly. As duas últimas colunas apresentam as médias anuais de atividade deste 1981 a 1996 em leites coletados na região de Resende – RJ e variam de 0,04 a 0,46 Bq/L. De um modo geral conclui-se que os valores da Tabela 28 estão abaixo da atividade mínima detectável encontrada para os leites Cativa e Polly.

Tabela 28 - Resultados de medidas de  $^{137}\text{Cs}$  em leite in natura

<sup>a</sup> Valores Diversos Atividade(Bq/L)	<sup>b</sup> Instituto de Biofísica Atividade(Bq/L)	<sup>c</sup> Furnas Atividade(Bq/L)	<sup>d</sup> CNAAA Atividade(Bq/L)	<sup>e</sup> INB Atividade(Bq/L)
0,23 ± 0,04	0,26 ± 0,08	0,14 ± 0,17	0,42	0,12
0,13 ± 0,03	0,37 ± 0,26	0,42 ± 0,29	0,43	0,12
0,13 ± 0,01	0,17 ± 0,06	0,19 ± 0,10	0,36	0,17
0,08 ± 0,04	0,17 ± 0,09		0,46	0,19
0,03 ± 0,01			0,33	0,15
0,27 ± 0,02			0,13	0,14
0,06			0,31	0,12
0,2			0,3	0,2
0,1			0,33	0,15
			0,3	0,15
			0,34	0,11
			0,3	0,07
			0,3	0,13
			0,29	0,1
			0,26	0,04

<sup>a</sup> Concentrações de  $^{137}\text{Cs}$  em leite em alguns estados brasileiros e países da América Latina (CASTRO et al.,1985).

<sup>b</sup> Concentrações médias de  $^{137}\text{Cs}$  em leite de fazendas da região de Angra dos Reis, medidas pelo Instituto de Biofísica (CASTRO et al.,1985).

<sup>c</sup> Concentrações médias de  $^{137}\text{Cs}$  em leite de fazendas da região de Angra dos Reis, medidas em Furnas (CASTRO et al.,1985).

<sup>d</sup> Valores de atividades obtidos para o  $^{137}\text{Cs}$  para as amostras da CNAAA medidas em Furnas no período de 1981 a 1996 (SANTOS FILHO & KRETER, 1997).

<sup>e</sup> Valores de atividades obtidos para o  $^{137}\text{Cs}$  para as amostras da INB medidas no período de 1981 a 1996 (SANTOS FILHO & KRETER, 1997).

Tabela 29 - Resultados em Bq/L de  $^{137}\text{Cs}$  para comparar com a Tabela 27

	Atividade Mínima Detectável (Bq/L)
Leite Cativa	0,41 ± 0,12
Leite Polly	0,38 ± 0,07

Na Tabela 30 estão apresentados os valores de atividade para as amostras de leite medidos em Hong Kong (YU & MAO, 1994). Para o  $^{40}\text{K}$ , foram encontrados valores entre 42,5 – 1 Bq/L com a média igual a  $48 \pm (0,4)$  Bq/L, que é um pouco abaixo do encontrado para os

leites Cativa e Polly. Para o  $^{137}\text{Cs}$  os valores variaram de 0,01 – 0,08 Bq/L com média em  $0,056 \pm (7,6\%)$ , bem abaixo dos obtidos neste trabalho. Para o  $^{232}\text{Th}$  o limite de detecção encontrado foi  $<0,1$  Bq/L, chegando a obter um valor de 0,079 Bq/L, que é um valor maior do que o medido para os leites Cativa e Polly. O número de amostras usadas na amostragem do leite de Hong Kong também foi 6 e o detector de GeHP tinha 25% de eficiência relativa.

Tabela 30 - Atividade de radionuclídeos naturais em leite.

	$^{40}\text{K}$ (Bq/L)	AMD de $^{137}\text{Cs}$ (Bq/L)	AMD de $^{232}\text{Th}$ (Bq/L)
Leite Cativa	$55 \pm 2$	$0,41 \pm 0,12$	$0,05 \pm 0,02$
Leite Polly	$53 \pm 2$	$0,38 \pm 0,07$	$0,04 \pm 0,01$
Leite de Hong Kong*	$48 \pm 1$	0,01 – 0,08	$< 0,1$

\* YU & MAO, 1994.

Foram encontrados, ainda, valores de atividade de  $^{232}\text{Th}$  em solos superficiais de 9,8 a 109,8 Bq/kg, de acordo com (PESSENDA et al., 1988). Também, conforme (BARISSIC, 1996), a atividade de  $^{232}\text{Th}$  na superfície de plantações é 0,5 Bq/kg e a 0,5 cm de profundidade no solo é de 4,7 Bq/kg. Estes valores estão acima dos valores de AMD encontrados, de  $0,46 \pm 0,16$  e  $0,32 \pm 0,12$  Bq/kg para os leites Cativa e Polly respectivamente, porque somente uma pequena parte do  $^{232}\text{Th}$  é transferida do solo para o leite (ROOSEVELT et al., 1997). Também, conforme a Tabela 31, são apresentados resultados de medidas de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{40}\text{K}$  em solo e na vegetação de duas regiões da Alemanha (ALBERTS et al., 1998). Os valores para o  $^{40}\text{K}$  estão próximos dos valores medidos para o leite, já os valores de  $^{137}\text{Cs}$  estão bem acima dos valores encontrados neste trabalho.

Tabela 31 - Valores de atividades de  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{40}\text{K}$  em solos e na vegetação em duas regiões da Alemanha (extraída de ALBERTS et al., 1998)

	Koenigstalalm	Priesbergalm
$^{137}\text{Cs}$ até 5cm no solo (Bq/kg)	374	516
$^{40}\text{K}$ até 5cm no solo (Bq/kg)	532	276
$^{137}\text{Cs}$ na vegetação (Bq/kg)	49,5	83,6
$^{40}\text{K}$ na vegetação (Bq/kg)	450	510

Comparando o maior valor encontrado para a atividade do  $^{137}\text{Cs}$ ,  $3,46 \pm 1,05$  Bq/kg, com o nível máximo permitido pela CNEN, dado na Tabela 9, de 370 Bq/kg para a soma de  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , chega-se à conclusão que os leites Cativa e Polly não apresentam nenhum perigo de radiação, assim como os níveis de  $^{40}\text{K}$  e  $^{232}\text{Th}$  são compatíveis com o de outras marcas de leite, podendo, portanto, ser consumidos normalmente.

## 7. CONCLUSÕES

Para analisar as amostras de leite em pó empregando um detector de GeHP com 10% de eficiência relativa, foram realizados previamente alguns testes de fundamental importância para o trabalho.

Inicialmente foi verificada a melhor disposição da blindagem do sistema. Após realizados vários testes com os materiais disponíveis optou-se pela blindagem de chumbo (10 cm), ferro (4 mm) e alumínio (2 mm), que melhor se adequou às necessidades. Em seguida, foi analisada a melhor geometria do recipiente de detecção, fazendo testes com três recipientes diferentes, concluindo que o béquer Marinelli de 2,1 litros, totalmente preenchido, é o que fornece maior número de contagens em relação às outras geometrias para as medidas e faixa de energia de interesse.

Após estes testes, através de um estudo de inferência estatística, determinou-se o tamanho da amostragem necessária para representar o lote de leite considerado, com uma confiabilidade de 95%. Esta análise mostrou-se importante para evitar desperdício de material, estimar o tempo necessário para as medidas e ter um resultado do lote considerado como um todo.

Com estes parâmetros já definidos, iniciaram-se as medidas das marcas de leite Cativa e Polly. Foi verificada a influência da auto-absorção da amostra e sua variação com a densidade, cujo fator medido foi considerado no cálculo das atividades.

Nos espectros das amostras de leite Cativa e Polly foram identificados os radionuclídeos  $^{40}\text{K}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{208}\text{Tl}$ . Como as amostras estavam em equilíbrio secular, a partir do  $^{208}\text{Tl}$  obteve-se a atividade do  $^{232}\text{Th}$ . A análise estatística dos dados comprovou a qualidade das medidas, mostrou a equivalência entre as repetições feitas e a ausência de desvios sistemáticos significativos.

O maior problema enfrentado durante o trabalho foi a baixa eficiência relativa do detector de GeHP disponível. Devido a esta limitação, cada medida teve que ser realizada durante um tempo consideravelmente longo, para se obter uma atividade mínima detectável adequada. Isso restringiu bastante o número total de medidas possíveis de serem repetidas no tempo disponível para esta pesquisa.

Pode-se concluir que, em geral, a técnica implementada apresentou bons resultados quando comparados com os dados de outros trabalhos da literatura. Por outro lado, os leites Cativa e Polly apresentam níveis normais de radioatividade, com as atividades dos radionuclídeos encontrados bem abaixo dos níveis máximos permitidos pela CNEN, podendo ser consumidos normalmente, sem nenhum tipo de restrição.

## REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALBERTS, B. P.; RACKWITZ, R.; SCIMMACK, W.; BUNZL, K. Transects survey of radiocesium in soils and plants of two alpine pastures. *The Science of the Total Environment*, Vol 216, pp 159-172, 1998.

BACCHI, M. A. Quantificação de terra em carregamentos de cana-de-açúcar pela determinação de radionuclídeos de ocorrência natural. Tese (Doutorado) - Centro de Energia Nuclear na Agricultura, USP, Piracicaba, Cap. 2, pp. 75, 1996.

BARATTA, E. J.; EASTERLY, D. G. Gamma ray spectroscopic determination of  $^{131}\text{I}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in foods: two collaborative studies. *J. Assoc. Off. Anal. Chem.*, Vol 72, n° 4, pp 667-669, 1989.

BARISSIC, D. Dose Rate Conversion Factor, Soil Thickness and their Influence on Natural Background Dose Rate in air Above Carbonate Terrains. *J. Environ. Radioactivity*, Vol 31, n° 1, pp 51 – 70, 1996.

BELJAARS, P. R.; VAN DIJK, R.; GEERTEN, J. A. M.; NOOTENBOOM, H. Determination of Long-Life Radiocesium Cs-134 e Cs-137 in Food by Gamma-Ray Spectrometry: Interlaboratory Study. *Journal of AOAC International*, Vol. 78, No 5, 1995.

BERGER, M.J.; HUBBELL, J.H. Program Xcom. Version 2, 18/02/1997.

BERNARSONI, G.; VAN ESPERO, P.; OSÓRIO, V.; PERAZA, H. Spectrum Reformatin Program – V2.0, IAEA, Physics Section, Seibersdorf Lab.

BURCHAM, E. M. Física Nuclear, Editorial Reverté, S.A., 1974

CASTRO, M. B.; PENNA-FRANCA, E.; MENDES W.; RAMOS, S. A.; PEREIRA, D. J. Césio-137 em leite produzido em fazendas da região de Angra dos Reis, RJ. *Acad. Brasil. Ciênc.*, Vol 57, 1985.

CNEN-NE-3.01. Diretrizes Básicas de Radioproteção, julho de 1988

CNEN-NE-6.05. Gerência de Rejeitos Radioativos em Instalações Radioativas, novembro de 1985

COKESA, D. M.; MARKOPVIC, M. M.; SOLESA, M. Determination of  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$  Concentration in Selected Honey Samples. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol 199, n° 6, pp 465-469, 1995.

CONFEPAR. Usina de Beneficiamento da Cooperativa Central Agro-Industrial Ltda. Av. Arthur Thomas, 2389 Londrina - PR.

CONSTANTINESCU, B.; GALERIU, D.; IVANOV, E.; PASCOVICI, G.; PLOSTINARU, D.  $^{131}\text{I}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  Concentrations in 1986 for Some Roumanian Foodstuffs. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol 144, n° 6, pp 429-437, 1990.

DE NADAI, E. A.; FERRAZ, E. S. B.; PESSEDA, L. C. R.; NASCIMENTO FILHO, V. F. Influência da Geometria de Detecção na Determinação de  $^{40}\text{K}$  Natural em Leite em Pó. Anais do II Congresso Geral de Energia Nuclear; 1988.

FOLHA DE LONDRINA, Saúde divulga laudos do leite radioativo, 7 fev. 1987.

GLASSTON, S. The Effects of Nuclear Weapons. Oak Ridge, USAEC, 1964.

I.E.E.E. Standard 325, 1971, (Reaffirmed in 1979)

IAEA 295 - International Atomic Energy Agency, Measurements of radionuclides in food and the environment, Technical Reports Series 295, Vienna, fev. 1989.

KAPLAN, I. Nuclear Physics, Addison-Wesley Publishing Comp., Inc., 1963.

KRANE, K. S. Introductory Nuclear Physics, John Wiley & Sons, Inc., 1955.

LABRECQUE, J. J.; ROSALES P.A.; CARIAS O. The preliminary results of the measurements of environmental levels of  $^{40}\text{K}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in Venezuela. Nuclear Instruments and Methods In Physics Research, A312, pp 217-222; 1992

MCA Emulator for Microsoft Windows, Maestro for Windows, Version 3.2, Model A65-BI, EG&G Ortec, 1996.

MICROCAL SOFTWARE, Microcal Origin, Version 3.5, Inc 1991-1994

MOUCHEL D.; WORDEL R. Measurement of Low Level Radioactivity un Environmental Samples by Gamma-Ray Spectrometry. Appl. Radiat. Isto. , Vol 43, No 1/2 , pp 49-59 , 1992.

NETER, J.; WASSERMAN, W.; KUTNER, M.H. Planning sample sizes, nonparametric tests, and random Anova model. Applied linear statistical models: regression, analysis of variance and experimental desigs. 3ed. Boston, Irwin, pp 633-42;1990.

NÚÑEZ-LAGOS, R.; VIRTO, A. Shielding and Background Reduction. Appl. Radiat. Isot., Vol 47, nº 9/10, pp 1011-1021, 1996.

PESSEDA, L. C. R.; NASCIMENTO FILHO, V. F.; DE NADAI; E. A.; FERRAZ, E. S. B. Determinação de  $^{226}\text{Ra}$  e  $^{232}\text{Th}$  em Amostras de Fosfatos Naturais, Gessos Industriais e Solos Superficiais por Espectrometria Gama. II Congresso Geral de Energia Nuclear, 1988.

RADIATION: DOSES, EFFECTS, RISKS United Nations Environment Programme, pp 18, 1985.

RAMACHANDRAN, T. V.; MISHRA, U. C. Measurement of Natural Radioactivity in Indian Foodstuffs by Gamma Spectrometry. Appl. Radiat. Isot., Vol 40, nº 10, pp 723-726, 1989.

RITCHIE, J. C.; MCHENRY, J.R. Application of Radioactive Fallout Cesium-137 for Measuring Soil Erosion and Sediment Accumulation Rates and Patterns: A Review. J. Environ. Qual., Vol 19, pp 215-233, 1990.

ROOSEVELT, R.; SILVA, L.H.C.; TADDEI, M. H. T. Estimativa da quantidade de solo ingerida pelo gado leiteiro numa região de alta radioatividade natural. XI ENFIR/IV ENAN Joint Nuclear Conference, Poços de Caldas, MG – Br; 1997.

SANTOS FILHO, A. M. S.; KRETER, R. N. Ocorrência de  $^{137}\text{Cs}$  devido a Fallout em amostras de leite na região circunvizinha ao CIR – Resende – RJ. XI ENFIR/IV ENAN Joint Nuclear Conference, Poços de Caldas, MG – Br; 1997.

SET OF 8 CALIBRATED GAMMA-EMITTING SOURCES (SEM-A2). International Atomic Energy Agency; Electronics and Measurement Section, Vienna, 1982.

STATSOFT, Inc 1984-1995, Statistica for Windows, Release 5.0.

SUTHERLAND, R. A.; JONG, E. Statistical analysis of gamma emitting radionuclide concentrations for three fields in southern saskatchewan, Canada. *Health Physics*, Vol 58, nº 4, pp 417-428, 1990.

VENTURINI, L.; NISTI, M. B. Correção de Auto-Absorção na Espectrometria Gama de Amostras Ambientais. XI ENFIR/IV ENAN Joint Nuclear Conference, Poços de Caldas, MG – BR; 1997.

YU, K. N.; MAO, S. Y. Application of High Resolution Gamma Ray Spectrometry Measuring Radioactivities in Drinks in Hong Kong. *Appl. Radiat. Isot.*, Vol 45, nº 10, pp 1031-1034, 1994.

ZULLIGER, M.R.; MIDDLEMAN, L.M.; AITKEN, D. Linearity and Resolution of Semiconductor Radiation Detectors. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, Vol 16 pg 47-61, 1969.

# ANEXO A

PROTÓCOLOS DE PREPARAÇÃO DE AMOSTRAS E DAS  
MEDIDAS

## A1. Protocolo de preparação de amostra de leite em pó

Preparação das amostras de leite em pó a serem medidas para verificar a atividade dos núclídeos presentes. Prepararam-se seis ( 6 ) amostras de cada tipo de leite (Cativa e Polly) conforme item 4.2.2.

Leite em pó (21 pacotes de 400 g).

- 1) Peneirar todo o leite ( peneira de 0,71mm ).
- 2) Estatística de amostragem: decidiu-se usar 6 amostras de cada lote de leite, ficando com 95% de confiabilidade (Ver item 4.2.2).
- 3) Homogeneizar 5 a 6 pacotes por vez por  $\frac{1}{2}$  hora - 4 partidas para homogeneizar todo o leite (homogeneização manual).
- 4) Homogeneizar cada 2 partidas por  $\frac{1}{2}$  hora.
- 5) Juntar todas as partidas e homogeneizar por  $\frac{1}{2}$  hora. Durante os itens de 1 a 4 foram usados luvas e máscara descartáveis.
- 6) Determinar a massa da amostra. Medir a massa do béquer Marinelli, colocar a amostra de leite no béquer com cuidado e devagar, para não criar regiões de compactação diferentes. Medir a massa do béquer com a amostra.

OBS.: não usar a função tara na balança para garantir uma propagação de desvios mais precisa.

- 7) Medir a umidade prévia do lote de leite de onde serão tiradas as amostras.
  - a) Preparar no mínimo 3 amostras de aproximadamente 100 mL de volume.

b) Colocar a amostra na estufa fria e aquecê-la até 105 °C, a partir daí deixar 24 horas secando.

c) A umidade é calculada através da seguinte relação:

$$U = \frac{m_{úmida} - m_{seca}}{m_{seca}} \times 100 \left( \frac{\text{g}_{\text{água}}}{\text{g}_{\text{leite seco}}} \right)$$

onde:

$U$  é a umidade da amostra

$m_{úmida}$  é a massa úmida da amostra, medida antes de colocar na estufa

$m_{seca}$  é a massa da amostra após permanecer 24 h na estufa

8) Anotar a data de fabricação, fabricante, marca e local de origem da amostra.

9) Lacrar as amostras.

a) Vedar com filme plástico (utilizado em cozinha) e tampar.

b) Passar fita adesiva.

c) Guardar por 40 dias para atingir o equilíbrio secular.

10) Com os dados dos itens 5 e 6 calcular a densidade das amostras e o seu desvio .

## A2. Protocolo de preparação de amostras para teste de geometria

- 1) Foram utilizados 10 pacotes de 400 g de leite em pó Cativa.
  - a) Peneirar todo o leite com malha de 0,71 mm.
  - b) Colocar todo o leite em um recipiente e mexer (homogeneizar) por 30 min, manualmente com uma espátula.
- 2) Ver a quantidade total de amostra requerida para a primeira bateria de medidas de acordo com os itens abaixo.
- 3) Teste de Geometria
  - a) Béquer Marinelli totalmente preenchido versus béquer Marinelli preenchido com  $\frac{3}{4}$  de amostra.
  - b) Tubo de plástico versus béquer Marinelli.
- 4) Determinar o volume da amostra com o menor desvio possível.
  - a) O volume será calculado colocando água nos recipientes.
  - b) Para melhor precisão da medida, escolher uma proveta adequada ao volume a ser medido.
  - c) Escolher uma proveta precisa (50 mL) e ir adicionando água nos béqueres e tubos até atingir o volume desejado. Neste caso, o desvio é calculado da seguinte forma:
$$\sigma = \sqrt{\sum_{n=1}^N A_n^2}$$
, onde A é o desvio de cada volume parcial.
  - d) Garantir o alinhamento da amostra no béquer que não será totalmente preenchido.
- 5) Determinar a massa da amostra.

OBS.: não usar a função tara na balança para garantir uma propagação de desvio mais precisa.

6) Medir a umidade prévia da amostra.

- a) Colocar no mínimo 3 amostras de aproximadamente 100 mL de volume.
- b) Colocar a amostra na estufa fria e aquecê-la até 105 °C, a partir daí deixar 24 horas secando.
- c) A umidade é calculada através da seguinte relação:

$$U = \frac{m_{úmida} - m_{seca}}{m_{seca}} \times 100 \left( \frac{\text{g}_{\text{água}}}{\text{g}_{\text{leite seco}}} \right)$$

7) Anotar a data de fabricação, fabricante, marca e local de origem da amostra.

8) Lacrar as amostras.

- a) Vedar com filme plástico (utilizado em cozinha) e tampar
- b) Passar fita adesiva
- c) Guardar por 40 dias para atingir o equilíbrio secular

9) Com os dados dos itens 4 e 5 calcular a densidade e o desvio das amostras

### A3. Protocolo de preparação de amostras calibradas

Serão montados um béquer padrão (com leite puro) e dois calibrados (leite+padrão IAEA). Para isso serão utilizados 13 pacotes de leite em pó Cativa de 400 g cada.

#### Processo de preparação

- 1) Peneirar todo o leite ( peneira com malha de 0,71mm ).
- 2) Homogeneizar 4 pac. por vez por  $\frac{1}{2}$  hora - 3 partidas para homogeneizar todo o leite (homogeneização manual).
- 3) Homogeneizar 2 partidas por  $\frac{1}{2}$  hora.
- 4) Acrescentar a 3ª partida e homogeneizar por  $\frac{1}{2}$  hora.
- 5) Montar um béquer e medir sua massa líquida (amostra padrão).
- 6) Preparar a primeira amostra calibrada utilizando 50 g do padrão IAEA-375
  - a) Misturar 50 g da amostra IAEA-375 com 50 g de leite e homogeneizar por  $\frac{1}{2}$  hora.
  - b) Juntar mais 100 g de leite e homogeneizar por  $\frac{1}{2}$  hora.
  - c) Sempre dobrar a massa e homogeneizar por  $\frac{1}{2}$  hora até completar um béquer.  
50-50  $\rightarrow$  100-100  $\rightarrow$  200-200  $\rightarrow$  400-400  $\rightarrow$  800-restante = béquer cheio.
  - d) Medir a massa líquida da amostra.
- 7) Fazer o mesmo procedimento do item 6 utilizando 50 g da IAEA-326, para a segunda amostra calibrada.
- 8) Observar a estimativa da perda de massa.

- 9) Vedar todas as amostras com filme plástico e tampar.
- 10) Guardar por 40 dias para atingir o equilíbrio secular.
- 11) Usar dosímetro, luvas de borracha e máscara descartáveis.
- 12) Lavar longamente com bastante água todos os utensílios utilizados, que tiveram contato com a amostra contaminada.

## DADOS NECESSÁRIOS

Para amostra padrão

massa do béquer vazio sem tampa  **$180,5 \pm 0,1$  g**

massa total do béquer sem tampa  **$1314,0 \pm 0,1$  g**

massa líquida :  **$M_{\text{padr}} = 1133,5 \pm 0,14$  g**

Para amostra calibrada IAEA-375

massa inicial de solo contaminado IAEA-375 =  $50,4 \pm 0,14$  g

massa do béquer vazio sem tampa  **$180,5 \pm 0,1$  g**

massa total do béquer sem tampa  **$1345,8 \pm 0,1$**

massa líquida :  **$M_{375i} = 1165,3 \pm 0,14$**

massa da bacia + colher sujos =  $611,7 \pm 0,1$  g

massa da bacia + colher limpos =  $608,3 \pm 0,1$  g

estimativa da perda de massa =  **$3,4 \pm 0,14$  g**

Para amostra calibrada IAEA-326

massa inicial de solo contaminado IAEA-375 =  $50,3 \pm 0,14$  g

massa do béquer vazio sem tampa  **$180,2 \pm 0,1$  g**

massa total do béquer sem tampa  **$1335,5 \pm 0,1$**

massa líquida :  **$M_{375i} = 1155,3 \pm 0,14$**

massa da bacia + colher sujos =  $611,8 \pm 0,1$  g

massa da bacia + colher limpos =  $607,8 \pm 0,1$  g

estimativa da perda de massa =  **$4,0 \pm 0,14$  g**

#### CÁLCULO DA DENSIDADE DAS AMOSTRAS CALIBRADAS

Densidade da amostra padrão

$$V_{\text{padrão}} = 2150 \pm 4,6 \text{ cm}^3$$

$$d = \frac{1133,5 \pm 0,14}{2150 \pm 4,6}$$

$$d_{\text{IAEA-375}} = 0,527 \pm 0,001 \text{ g/cm}^3$$

O cálculo do volume das amostras calibradas foi feito medindo-se com um paquímetro quanto faltava de amostra para preencher totalmente o béquer Marinelli. Com o valor da altura (que foi uma média de 8 medidas) e com o raio do béquer foi possível calcular o volume de amostra que faltava para completar o béquer. Uma vez que se sabe-se qual é o volume do

béquer completamente cheio, desconta-se o volume que faltava e obtém-se o volume da amostra calibrada.

Com este volume e a massa é possível calcular a densidade do leite contido no béquer.

Volume da amostra IAEA-375

Raio do béquer:  $r = 7,518 \pm 0,433$  cm

Altura :  $h = 0,798 \pm 0,099$  cm

Volume que faltava para completar o béquer:  $V_h = 141,69 \pm 30,02$  cm<sup>3</sup>

Volume da amostra IAEA-375

$$\begin{aligned} V_{\text{IAEA-375}} &= V_T - V_h \\ &= (2150 \pm 4,6) - (141,69 \pm 30,02) \end{aligned}$$

$$V_{\text{IAEA-375}} = 2008,3 \pm 30,3 \text{ cm}^3$$

Densidade da amostra IAEA-375

$$d = \frac{1165,3 \pm 0,14}{2008,3 \pm 30,3}$$

$$d_{\text{IAEA-375}} = 0,581 \pm 0,009 \text{ g/cm}^3$$

Volume da amostra IAEA-326

Raio do béquer:  $r = 7,518 \pm 0,433$  cm

Altura :  $h = 1,966 \pm 0,156$  cm

Volume que faltava para completar o béquer:  $V_h = 349,09 \pm 39,72$  cm<sup>3</sup>

Volume da amostra IAEA-326

$$\begin{aligned} V_{\text{IAEA-326}} &= V_T - V_h \\ &= (2150 \pm 4,6) - (349,09 \pm 39,72) \end{aligned}$$

$$V_{\text{IAEA-326}} = 1801 \pm 40 \text{ cm}^3$$

Densidade da amostra IAEA-326

$$d = \frac{1155,3 \pm 0,14}{1801 \pm 40}$$

$$d_{\text{IAEA-326}} = 0,642 \pm 0,014 \text{ g/cm}^3$$

Atividades da amostra **IAEA-375**

$$A(t) = A(t_0)e^{-\lambda t}$$

$$t = 7,16 \text{ anos}$$

Calculado para 01/03/99

Nuclídeo	Atividade ( Bq/kg )
$^{40}\text{K}$	$423,99 \pm 34,34$
$^{60}\text{Co}$	$0,705 \pm 0,681$
$^{106}\text{Ru}$	$0,433 \pm 0,049$
$^{125}\text{Sb}$	$12,764 \pm 1,199$
$^{134}\text{Cs}$	$41,76 \pm 3,84$
$^{137}\text{Cs}$	$4475 \pm 327$
$^{210}\text{Pb}$	$28,978 \pm 10,779$
$^{226}\text{Ra}$	$7,134 \pm 1,142$
$^{228}\text{Th}$	$1,517 \pm 0,282$
$^{232}\text{Th}$	$20,49 \pm 1,99$
$^{235}\text{U}$	$1,19 \pm 0,59$
$^{238}\text{U}$	$24,39 \pm 5,86$

Atividades da amostra **IAEA-326**

$$A(t) = A(t_0)e^{-\lambda t}$$

$$t = 2,6 \text{ anos}$$

Calculado para 01/03/99

Nuclídeo	Atividade ( Bq/kg )
<sup>40</sup> K	575,39 ± 60,42
<sup>90</sup> Sr	7,199 ± 1,497
<sup>106</sup> Ru	0,693 ± 0,063
<sup>125</sup> Sb	1,239 ± 1,001
<sup>134</sup> Cs	1,921 ± 0,559
<sup>137</sup> Cs	116,54 ± 15,73
<sup>210</sup> Pb	42,088 ± 15,825
<sup>210</sup> Po	0,319 ± 0,006
<sup>226</sup> Ra	33,47 ± 12,52
<sup>228</sup> Th	15,020 ± 1,83
<sup>232</sup> Th	38,54 ± 7,01
<sup>234</sup> U	19,89 ± 10,3
<sup>235</sup> U	1,603 ± 0,925
<sup>238</sup> U	26,41 ± 9,82
<sup>241</sup> Am	0,657 ± 0.221

#### A4. Protocolo de preparação de amostras com densidade variável (compactadas)

Preparação das amostras de leite em pó compactadas. Serão preparadas 5 amostras com compactações diferentes usando Leite em pó Cativa.

Leite em pó em natura, homogeneizado (25 pacotes de 400 g).

- 1) Peneirar todo o leite ( peneira usada de 0,71mm ).
- 2) Homogeneizar 6 pacotes por vez por ½ hora - 4 partidas para homogeneizar todo o leite (homogeneização manual).
- 3) Homogeneizar cada 2 partidas por ½ hora.
- 4) Juntar todas as partidas e homogeneizar por ½ hora.
- 5) Determinar a massa da amostra.
- 6) Processo de compactação: o primeiro béquer foi preenchido cuidadosamente, apenas balançando o béquer para não ficarem espaços vazios. No segundo béquer, a acomodação do leite foi feita com leves batidas. No terceiro, o grau de compactação foi aumentado dando-se fortes batidas no béquer. Os quarto e quinto béqueres forão compactados com o auxílio de uma prensa devidamente construída para se encaixar no béquer Marinelli.
- 7) Medir a umidade prévia da amostra.
  - d) Colocar no mínimo 3 amostras de aproximadamente 100 mL de volume.
  - e) Colocar a amostra na estufa fria e aquecê-la até 105 °C, a partir daí deixar 24 horas secando.
  - f) A umidade é calculada através da seguinte relação:

$$U = \frac{m_{umida} - m_{seca}}{m_{seca}} \times 100 \left( \frac{\text{g}_{\text{água}}}{\text{g}_{\text{leite seco}}} \right)$$

- 8) Anotar a data de fabricação, fabricante, marca e local de origem da amostra.
- 9) Lacrar as amostras.
  - d) Vedar com filme plástico (utilizado em cozinha) e tampar
  - e) Passar fita adesiva
  - f) Guardar por 40 dias para atingir o equilíbrio secular
- 10) Com os dados dos itens 5 e 6 calcular a densidade das amostras e os seus desvios

## DADOS NECESSÁRIOS

Os índices utilizados na notação são os seguintes:

b : béquer Marinelli preenchido totalmente

$M_{0b}$  : massa do béquer vazio

$M_{ba}$  : massa bruta da amostra (béquer com leite)

$M_{La}$  : massa líquida da amostra

VOLUMES:

$$V_b = 2150 \pm 4,6 \text{ cm}^3$$

MASSA

Amostra 1

$$M_{0b1} = 180,9 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{ba1} = 1314,2 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{La1} = 1133,3 \pm 0,14 \text{ g}$$

$$d_1 = 0,527 \pm 0,0011 \text{ g/cm}^3$$

Amostra 2

$$M_{0b2} = 180,8 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{ba2} = 1446,6 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{La2} = 1263,8 \pm 0,14 \text{ g}$$

$$d_2 = 0,5878 \pm 0,0012 \text{ g/cm}^3$$

Amostra 3

$$M_{0b3} = 181,4 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{ba3} = 1574,6 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{La3} = 1393,2 \pm 0,14 \text{ g}$$

$$d_3 = 0,648 \pm 0,0014 \text{ g/cm}^3$$

Amostra 4

$$M_{0b4} = 181,6 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{ba4} = 1645,2 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{La4} = 1463,6 \pm 0,14 \text{ g}$$

$$d_4 = 0,6807 \pm 0,0014 \text{ g/cm}^3$$

Amostra 5

$$M_{0b5} = 180,3 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{ba5} = 1661,5 \pm 0,1 \text{ g}$$

$$M_{L,a5} = 1481,2 \pm 0,14 \text{ g}$$

$$d_5 = 0,688 \pm 0,0015 \text{ g/cm}^3$$

- Cálculo da massa líquida

$$M_{L,a} = M_{ba} - M_{0b}$$

$$\sigma_{M_L} = \sqrt{\sigma_{M_{La}}^2 + \sigma_{M_{0b}}^2}$$

DENSIDADE

$$d = \frac{M_L}{V}$$

$$\sigma_d = d \sqrt{\left(\frac{\sigma_{M_L}}{M_L}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_V}{V}\right)^2}$$

## PARA MEDIR A UMIDADE

serão retiradas 3 amostras

- Recipiente vazio

$$m_{01} = 133,818 \pm 0,001 \text{ g}$$

$$m_{02} = 53,112 \pm 0,001 \text{ g}$$

$$m_{03} = 43,139 \pm 0,001 \text{ g}$$

- Recipiente com amostra úmida

$$m_{u1} = 229,492 \pm 0,001 \text{ g}$$

$$m_{u2} = 126,739 \pm 0,001 \text{ g}$$

$$m_{u3} = 240,390 \pm 0,001 \text{ g}$$

Após deixar na estufa por 24 horas

$$m_{s1} = 225,187 \pm 0,001 \text{ g}$$

$$m_{s2} = 123,523 \pm 0,001 \text{ g}$$

$$m_{s3} = 233,870 \pm 0,001 \text{ g}$$

Cálculo da massa líquida úmida e seca

$$m_{Lu} = m_u - m_0$$

$$m_{Ls} = m_s - m_0$$

Massa líquida úmida

$$m_{Lu1} = 95,674 \pm 0,0014 \text{ g}$$

$$m_{Lu2} = 73,627 \pm 0,0014 \text{ g}$$

$$m_{Lu3} = 197,251 \pm 0,0014 \text{ g}$$

Massa líquida seca

$$m_{Su1} = 91,369 \pm 0,0014 \text{ g}$$

$$m_{Su2} = 70,411 \pm 0,0014 \text{ g}$$

$$m_{Su3} = 191,731 \pm 0,0014 \text{ g}$$

Cálculo da umidade

$$U = \frac{m_{Lu} - m_{Ls}}{m_{Ls}} \times 100$$

$$U_1 = 4,71 \pm 0,2 \%$$

$$U_2 = 4,57 \pm 0,2 \%$$

$$U_3 = 3,42 \pm 0,2 \%$$

## A5. Protocolo de preparação de amostras com leite importado contaminado

### Processo de preparação

- 1) Verificar com monitor de área a dose de radiação da amostra, para verificar se é inferior ao limite de 2,5 mR/h.
- 2) Homogeneizar por 1/2 hora a quantidade suficiente para preencher um béquer Marinelli (homogeneização manual).
- 3) Usar dosímetro pessoal, luvas de borracha e máscara descartáveis.
- 4) Vedar todas as amostras com filme plástico e tampar.
- 5) Guardar por 40 dias para atingir o equilíbrio secular.
- 6) Lavar longamente com bastante água todos os utensílios utilizados, que tiveram contato com a amostra contaminada. Desde que o nível de radiação seja inferior a 0,2 R/h (CNEN-NE-6.05, 1985) não existe perigo de contaminação, além desse valor o lixo radioativo deverá ser armazenado de acordo com as normas da CNEN

Amostra de: Ceteco Milk

Data de Fabricação: out/86

Fabricante: Curaçao Trading Company B.V. Diemen-Holanda

País: Holanda

Volume : 1013, 59 ± 94,94 g

Massa do Béquer Vazio ( sem tampa):  $180,5 \pm 0,1$  g

Massa do Béquer com Leite:  $833,4 \pm 0,1$  g

Massa Líquida:  $652,9 \pm 0,14$  g

DENSIDADE:  $0,644 \pm 0,060$  g/cm<sup>3</sup>

Amostra de: Dano Milk

Data de Fabricação: set/86

Fabricante: AKAFA

País: Dinamarca

Volume do Béquer:  $2150 \pm 4.6$  ml

Massa do Béquer Vazio ( sem tampa):  $180,5 \pm 0,1$  g

Massa do Béquer com Leite:  $1384,0 \pm 0,1$  g

Massa Líquida:  $1203,5 \pm 0,14$  g

DENSIDADE :  $0.559 \pm 0.001$  g/cm<sup>3</sup>

Amostras preparadas dia 12/03/1999

## A6. Seqüência de medidas

A seqüência de medidas adotada para a tomada de dados foi, de um modo geral, estabelecida como segue:

- 1) Medida da fonte de  $^{152}\text{Eu}$  para calibração em energia
- 2) Medida do fundo, béquer Marinelli vazio
- 3) Medida das amostras

Para cada seqüência de medidas foram realizadas no mínimo, três repetições

Tempo de medida: 48h (ou 172800s) para todas as medidas com os béqueres e de 24h (ou 86400s) para a medida da fonte de  $^{152}\text{Eu}$  para calibração do detector.

Abaixo é mostrado um exemplo da primeira seqüência de medidas das amostras com densidade variável (amostras compactadas). Esta seqüência foi repetida três vezes para cada conjunto de amostras a ser medido.

### 1ª Seqüência de medidas

- Medida da fonte de  $^{152}\text{Eu}$  para calibração
- Medida de fundo (béquer vazio)
- Medida da amostra compactada 1
- Medida da amostra compactada 2
- Medida da amostra compactada 3
- Medida da amostra compactada 4
- Medida da amostra compactada 5

**2ª Seqüência de medidas**

Idem

**3ª Seqüência de medidas**

Idem