



UNIVERSIDADE  
ESTADUAL DE LONDRINA

---

ADEMAR DE OLIVEIRA FERREIRA

**DISTRIBUIÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM UM  
AFLORAMENTO DE SEDIMENTOS PERMIANOS DA  
FORMAÇÃO IRATÍ NA BACIA DO PARANÁ**

---

Londrina  
2008

**ADEMAR DE OLIVEIRA FERREIRA**

**DISTRIBUIÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM UM  
AFLORAMENTO DE SEDIMENTOS PERMIANOS DA  
FORMAÇÃO IRATÍ NA BACIA DO PARANÁ**

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

Orientador: Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni.

Londrina  
2008

**Catálogo na publicação elaborada pela Divisão de Processos Técnicos da  
Biblioteca Central da Universidade Estadual de Londrina.**

**Dados Internacionais de Catalogação-na-Publicação (CIP)**

F383d Ferreira, Ademar de Oliveira.

Distribuição de radionuclídeos em um afloramento de sedimentos permianos da formação Irati na Bacia do Paraná / Ademar de Oliveira Ferreira. – Londrina, 2008.  
108f. : il.

Orientador: Carlos Roberto Appoloni.

Dissertação (Mestrado em Física) – Universidade Estadual de Londrina, Centro de Ciências Exatas, Programa de Pós-Graduação em Física, 2008.

Bibliografia: f.102-104.

1. Espectrometria de raio gama – Teses.
2. Rochas sedimentares – Teses.
3. Radiação ambiental – Teses. I. Appoloni, Carlos Roberto. II. Universidade Estadual de Londrina. Centro de Ciências Exatas. Programa de Pós-Graduação em Física.

**ADEMAR DE OLIVEIRA FERREIRA**

**DISTRIBUIÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS EM UM  
AFLORAMENTO DE SEDIMENTOS PERMIANOS DA  
FORMAÇÃO IRATÍ NA BACIA DO PARANÁ**

**BANCA EXAMINADORA**

---

Prof. Dr. Carlos Roberto Appoloni  
Universidade Estadual de Londrina

---

Prof. Dr. Avacir Casanova Andrello  
Universidade Estadual de Londrina

---

Profa..Dra. Cibele B. Zamboni  
Instituto de Pesquisas Energéticas e  
Nucleares (IPEN)

Londrina, 28 de fevereiro de 2008.

Dedico a meus avós (*in memoriam*).

## **AGRADECIMENTOS**

A minha família, pelo apoio confiança amor e carinho.

Ao Prof. Dr Carlos Roberto Appoloni, pela orientação e amizade .

Aos amigos e colegas do Laboratório, pela amizade e companheirismo.

Aos professores e funcionários do departamento, pelos ensinamentos esugestões.

Aos amigos e colegas do curso, por esses dois anos juntos.

Ao Rodrigo pela ajuda e paciência em todas as fases deste trabalho.

A Juliana, por todos os momentos juntos.

A UEL e ao departamento de Física pela infra-estrutura.

A CAPES pelo suporte financeiro

FERREIRA, Ademar de Oliveira. **Distribuição de Radionuclídeos em um Afloramento de Sedimentos Permianos da Formação Iratí na Bacia do Paraná.** 2008. 108f. Dissertação (Mestrado em Física) – Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2008.

## RESUMO

Este trabalho tem o objetivo de estudar radionuclídeos naturais em rochas sedimentares. A concentração destes reflete a origem dos sedimentos, o ambiente deposicional assim como algumas características mineralógicas da rocha matriz, e também eventos mais recentes como intemperismo e erosão. Utilizando a espectrometria de raios gama de alta resolução, foi calculado o perfil de concentração de atividade dos radionuclídeos naturais  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  em rochas da Formação Iratí pertencente à Bacia Sedimentar do Paraná. As amostras foram coletadas em uma mina de calcário abandonada, na cidade de Sapopema, (PR). Foram coletadas 24 amostras, treze do perfil vertical exposto com aproximadamente 5,50 m, cuja estratigrafia é representada por uma alternância entre camadas decimétricas de calcários, folhelhos betuminosos, e algumas camadas de ritmitos (lâminas milimétricas de calcário e folhelho betuminoso), 8 alicotas de uma amostra para estudar a sua variabilidade, e três amostras de rigolitos em estágios seqüenciais de intemperização. Cada amostra foi seca ao sol durante cerca de 48 horas, britada, peneirada em uma peneira de 4 mm e selada em um recipiente cilíndrico. As medidas foram realizadas utilizando um detector de Germânio Hiper Puro (HPGe) com eficiência relativa de 66 %, conectado a uma cadeia eletrônica padrão de espectrometria gama. As concentrações de atividade de  $^{238}\text{U}$  medidas foram menores para os calcários ( $17,80 \pm 0,09 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ ), maiores para os folhelhos ( $125,5 \pm 2,6 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ ), com enriquecimento de urânio na amostra (200),  $548 \pm 16 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ , topo do paredão, e intermediárias para os ritmitos ( $23,0 \pm 1,3 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ ). A razão  $e\text{Th}/\text{K}$ , medida do perfil estudado tem valores parecidos, indicando características mineralógicas semelhantes para os calcários, folhelhos, ritmitos e rigolitos estudados. Por outro lado a razão  $e\text{Th} / e\text{U}$  mostrou que duas das três amostras de regolitos pertencem a ambientes oxidantes, favorecendo a lixiviação do urânio, o que pode estar causando o enriquecimento da amostra (200), uma vez que estes solos estão acima do paredão. As taxas de doses médias medidas foram de  $16 \text{ nGy.h}^{-1}$  para os calcários e ritmitos,  $79,5 \text{ nGy.h}^{-1}$  para os folhelhos e  $329,5 \text{ nGy.h}^{-1}$  para o folhelho enriquecido do topo do paredão. Estes resultados fornecem dados para a estimativa da contribuição destes produtos para a dose de radiação recebida pelo público em geral, além de banco de dados para estudos mineralógicos e geofísicos da Bacia do Paraná.

**Palavras-chave:** Espectrometria gama. Rochas sedimentares. Radiação ambiental.

FERREIRA, Ademar de Oliveira. **Radionuclides Distribution in Blooming of the Permian Sediments from the Irati Formation of the Paraná Basin.** 2008. 108f. Dissertation (Master. in Physics) – State University of Londrina, Londrina, 2008.

## ABSTRACT

The objective of this work is to study natural radionuclides in sedimentary rocks. The concentration of them reflects the origin of the sediments, the depositional environment as well as some mineralogical characteristics of the rock matrix, and also more recent events as weathering and erosion. Using gamma ray high resolution spectrometry, the profile of activity concentration of the natural radionuclides was assessed for  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  in rocks of the Irati Formation belonging to Paraná Sedimentary Basin. The samples were collected at a limestone abandoned mine, in the city of Sapopema, (PR). 24 samples were collected, eleven from the exposed vertical profile with approximately 5.50 m, whose stratigraphy is represented by an alternation among decimetric layers of limestones, bituminous shales, and some rhythmic layers (millimetric sheets of limestone and bituminous shales), 9 repetitions of a sample to study the variability, and three regolith samples in sequential apprenticeships of weathering. Each sample was dried in the sun during about 48 hours, broken, drizzled in a sieve of 4 mesh and put, in a cylindrical container. The measures were accomplished using a Germanium Hiper Pure detector (HPGe) with relative efficiency of 66%, connected to a standard spectrometry electronic chain. The measured concentrations of activity of  $^{238}\text{U}$  were smaller for the limestones ( $17.80 \pm 0.09 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ ), larger for the bituminous shales ( $125.5 \pm 2.6 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ ), with enrichment of uranium in the sample (200),  $548 \pm 16 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ , upper part of the column), and intermediate for the rhythmic (  $23.0 \pm 1,3 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ ). The ratio eTh/K obtained for the studied profiles has equivalent values, indicating similar mineralogical characteristics for the limestones, bituminous shales, rhythmic and studied regoliths. On the other hand, to the ratio eTh/eU showed that two of the three regolith samples belong to oxidizer atmospheres, favoring the leaching of uranium, what can be causing the enrichment of the sample (200), once these soils are above the column. The average measured doses were  $16 \text{ nGy.h}^{-1}$  for the limestones and rhythmic,  $79.5 \text{ nGy.h}^{-1}$  for the bituminous shales and  $329.5 \text{ nGy.h}^{-1}$  for the enriched bituminous shales of the top of the column. These results supply data to estimate the contribution of these products for the radiation dose received by the public in general, besides of database for mineralogical and geophysical studies of the Paraná Basin.

**keywords:** Gamma-ray spectrometry. Sedimentary rocks. Environmental radiation.

## LISTA DE FIGURAS

<b>Figura 1</b> – Exemplo de transição gama em cascata.....	21
<b>Figura 2</b> – Representação esquemática da distribuição do momento das partículas beta emitidas por uma fonte radioativa adaptada de Appoloni, (2006) .....	24
<b>Figura 3</b> – Localização da bacia do Paraná no Brasil, modificado de Ribeiro (2001a) .....	41
<b>Figura 4</b> – Mapa geológico simplificado da bacia do Paraná modificado de Borguetti (2008).....	42
<b>Figura 5</b> – Blindagem da ORTEC modelo HPLBS1.....	52
<b>Figura 6</b> – Diagrama para os componentes da eletrônica utilizada .....	55
<b>Figura 7</b> – Geometria da amostra utilizada nas medidas .....	56
<b>Figura 8</b> – Configuração do sistema de detecção .....	57
<b>Figura 9</b> – Paredão de mina abandonada onde foi realizada a amostragem .....	59
<b>Figura 10</b> – Distribuição das amostras no paredão .....	60
<b>Figura 11</b> – Espectro gama da amostra 201 para um tempo de contagem de 86400 s .....	72
<b>Figura 12</b> – Espectro gama da amostra 200(1mm) para um tempo de contagem de 86400 s .....	73
<b>Figura 13</b> – Espectro gama do Fundo (Béquer vazio) para um tempo de contagem de 259200 s .....	73
<b>Figura 14</b> – Curva de eficiência utilizando a amostra certificada de sedimento marinho IAEA-385, referente aos radionuclídeos das séries do $^{232}\text{Th}$ e $^{238}\text{U}$ , e linha do $^{40}\text{K}$ .....	74
<b>Figura 15</b> – Validação para a curva de eficiência obtida com a amostra certificada IAEA-385 a partir da amostra.....	75
<b>Figura 16</b> – Distribuição dos valores dos Qui-Quadrados das medidas das atividades para o perfil amostrado .....	76
<b>Figura 17</b> – Concentração da Atividade de $^{232}\text{Th}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^{238}\text{U}$ e $^{40}\text{K}$ nas amostras .....	77

<b>Figura 18</b> – Local da amostra 202 .....	79
<b>Figura 19</b> – Perfil das concentrações de atividades de $^{226}\text{Ra}$ , $^{238}\text{U}$ , $^{232}\text{Th}$ e $^{40}\text{K}$ nas alíquotas da amostra 202.....	80
<b>Figura 20</b> – Correlação das atividades dos radionuclídeos $^{226}\text{Ra}$ , $^{232}\text{Th}$ e $^{40}\text{K}$ para as repetições da amostra 202.....	81
<b>Figura 21</b> – Estudo da reprodutibilidade das amostras 202(a), 202(g), 202(j) e 206.....	82
<b>Figura 22</b> – Estudo da variabilidade da Atividade de $^{232}\text{Th}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^{238}\text{U}$ e $^{40}\text{K}$ na amostra 206.....	83
<b>Figura 23</b> – Estudo da variabilidade da Atividade de $^{232}\text{Th}$ , $^{226}\text{Ra}$ , $^{238}\text{U}$ e $^{40}\text{K}$ na amostra 207.....	84
<b>Figura 24</b> – Razões $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ e $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ respectivamente para as séries do urânio e tório nas amostras do perfil estudado.....	85
<b>Figura 25</b> – Perfil de concentrações das amostras.....	86
<b>Figura 26</b> – Correlação entre a concentração de urânio e tório nas amostras .....	88
<b>Figura 27</b> – Correlação entre a concentração de urânio e potássio nas amostras.....	89
<b>Figura 28</b> – Correlação entre a concentração de tório e potássio nas amostras.....	90
<b>Figura 29</b> – Correlação 3D entre a concentração de equivalente urânio, tório e porcentagem de potássio nas amostras .....	91
<b>Figura 30</b> – Correlação 3D entre a concentração de equivalente urânio, tório e porcentagem de potássio nas amostras ( Calcários, ritmitos e amostra 302).....	92
<b>Figura 31</b> – <i>Cross plot</i> de tório-potássio e tório-urânio do perfil estudado .....	93
<b>Figura 32</b> – Taxa de Dose por radionuclídeo em (nGy/h) do Perfil Amostrado .....	94
<b>Figura 33</b> – Taxa de Dose Total em (nGy/h) das amostras do Perfil Amostrado.....	95

## LISTA DE TABELAS

<b>Tabela 1</b> – Principais Radionuclídeos Cosmogênicos adaptado de Kathren, (1988) .....	31
<b>Tabela 2</b> – Radionuclídeos primordiais isolados que ocorrem naturalmente adaptado Kathren, (1988).....	32
<b>Tabela 3</b> – Produtos iniciais e finais das séries radioativas adaptado de Burcham, (1974).....	33
<b>Tabela 4</b> – Série radioativa do $^{238}\text{U}$ , modificado de IAEA TECDOC (2003) .....	34
<b>Tabela 5</b> – Série radioativa do $^{235}\text{U}$ , modificado de IAEA TECDOC (2003).....	35
<b>Tabela 6</b> – Série radioativa do $^{232}\text{Th}$ , modificado de IAEA TECDOC (2003) .....	36
<b>Tabela 7</b> – Unidades e quantidades SI e não SI aceitas para ser usadas como SI, modificadas de UNSCEAR (1993) .....	45
<b>Tabela 8</b> – Conversão da atividade específica em rochas para a concentração de radionuclídeos modificado de IAEA TECDOC (2003).....	67
<b>Tabela 9</b> – Taxa de exposição e taxa de dose teórica para raios gama modificado de IAEA TECDOC( 2003).....	68
<b>Tabela 10</b> – Atividade dos radionuclídeos presentes na amostra certificada IAEA-385 .....	70
<b>Tabela 11</b> – Atividade dos radionuclídeos presentes na amostra certificada IAEA-327 .....	71
<b>Tabela 12</b> – Valores médios das concentrações de atividade dos calcários, folhelhos e ritmitos .....	78
<b>Tabela 13</b> – Resultados obtidos neste trabalho e resultados encontrados na literatura.....	87

## SUMÁRIO

<b>1 INTRODUÇÃO</b> .....	13
<b>2 REVISÃO DE LITERATURA</b> .....	15
<b>3 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA</b> .....	18
3.1 PRINCÍPIOS DA RADIOATIVIDADE .....	18
3.1.1 Conceitos Básicos de Radioatividade .....	18
3.1.2 Tipos de Decaimento Radioativo .....	19
· Desexcitação Gama .....	19
· Desintegração Alfa .....	22
· Desintegração Beta .....	23
3.1.3 Passagem da Radiação através da Matéria .....	25
3.1.4 Natureza Estatística do Decaimento Radioativo .....	28
3.1.5 Fontes Naturais de Radiação .....	30
3.1.6 Desequilíbrio Radioativo das Séries .....	36
3.1.7 Localização na Natureza .....	37
3.2 RADIOATIVIDADE E AS ROCHAS .....	38
3.2.1 A Geoquímica dos Radionuclídeos .....	39
3.2.2 Rochas da Bacia do Paraná .....	40
3.2.3 Rochas Sedimentares da Bacia do Paraná .....	41
3.2.4 Formação Irati .....	42
3.3 FUNDAMENTOS DE ESPECTROMETRIA GAMA .....	44
3.4 ALGUNS MÉTODOS RADIOMÉTRICOS .....	46
3.4.1 Espectrometria Gama em Laboratório .....	46
3.4.2 Espectrometria Gama Portátil .....	47
3.4.3 Outras Metodologias (Automóvel, Furos de Sondas, Marinha e Aérea) .....	47
<b>4 MATERIAIS E MÉTODOS</b> .....	49
4.1 ESPECTROMETRIA GAMA COM (HPGE) .....	49

4.1.2 Detector.....	49
4.1.2.1 Resolução em Energia .....	49
4.1.2.2 Eficiência .....	51
4.1.2.3 Blindagem do Sistema de Detecção.....	51
4.1.2.4 Calibração em Energia .....	53
4.1.3 Eletrônica Nuclear .....	53
4.1.4 A Geometria Usada.....	56
4.1.5 Configuração do Sistema de Detecção .....	57
4.2 AMOSTRAGEM .....	57
4.2.1 Descrição das Amostras.....	59
4.2.2 Origem e importância das amostras.....	60
4.2.3 Preparação das Amostras .....	61
4.2.4 Variabilidade e Reprodutibilidade .....	61
4.3 ANÁLISE.....	62
4.3.1 Expressão para a Estimativa da Atividade .....	63
4.3.2 Teste de Qui-Quadrado ( $\chi^2$ ) .....	65
4.3.3 Limite Mínimo de Detecção (LLD) .....	66
4.3.4 Cálculo das concentrações .....	67
4.3.5 Cálculo da taxa de dose .....	68
4.3.6 Calibração em Eficiência .....	69
4.3.7 Validação da Metodologia .....	71
<b>5 RESULTADOS E DISCUSSÕES.....</b>	<b>72</b>
5.1 CURVA DE EFICIÊNCIA .....	74
5.2 VALIDAÇÃO DA METODOLOGIA .....	74
5.3 ATIVIDADES .....	76
5.3.1 Estudo da Variabilidade da Amostra 202 .....	79
5.3.2 Estudo da Reprodutibilidade .....	82
5.3.3 Estudo da Variabilidade das amostras 206 e 207 .....	83
5.4 ESTUDO DO EQUILÍBRIO NAS SÉRIES DO $^{238}\text{U}$ E $^{232}\text{Th}$ .....	84
5.5 CONCENTRAÇÕES DE RADIONUCLÍDEOS .....	85

5.5.1 Correlações entre as concentrações dos radionuclídeos .....	88
5.6 DOSES DOS RADIONUCLÍDEOS .....	94
<b>6 CONCLUSÕES .....</b>	<b>97</b>
<b>REFERÊNCIAS.....</b>	<b>98</b>
<b>ANEXOS .....</b>	<b>102</b>
ANEXO 1 – Tabela dos parametros para distribuição dos $\chi^2$ .....	103
ANEXO 2 – Tabela dos parametros para distribuição de student .....	105
ANEXO 3 – Tempo de utilização do detector .....	107

## 1 INTRODUÇÃO

A radioatividade natural está presente em toda crosta terrestre. Nas rochas sedimentares esta concentração reflete a origem dos sedimentos, ambiente de deposição assim como processos mais recentes de intemperismo e erosão. De acordo com a concentração de  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  é possível atribuir um solo ou sedimento a determinado tipo de formação geológica, pois estas possuem características radiométricas e mineralógicas bem definidas. Em termos da razão  $e\text{Th}/e\text{U}$  é possível saber se o ambiente de deposição é oxidante ou redutor, devido à característica de maior mobilidade dos radionuclídeos da série do  $^{238}\text{U}$  em relação aos radionuclídeos da série do  $^{232}\text{Th}$ . Além disso, através do estudo do desequilíbrio nas séries do urânio e tório, podemos atribuir um intervalo de tempo para possíveis processos de intemperismo.

Atualmente muitos trabalhos a respeito dos radionuclídeos naturais tem sido desenvolvidos no mundo. A maioria deles faz menção à proteção radiológica como, por exemplo, estudos com granitos e basaltos e outras rochas que são amplamente usadas em construção civil, areias de praias que são freqüentadas por milhares de pessoas e estudos de mapeamento de regiões que possui uma determinada característica geológica para entender como esta formação geológica afeta as vizinhanças, seja ela rios, praias ou lagos. Uma outra fonte de estudos de caráter geológico, avalia a concentração de radionuclídeos naturais em afloramentos com o objetivo de entender, caracterizar e gerar banco de dados de determinada formação geológica.

O objetivo deste trabalho é gerar um banco de dados para a Formação Irati (Bacia sedimentar do Paraná), avaliar em termos de proteção radiológica, estudar o desequilíbrio nas séries do urânio e tório e fazer inferências a respeito do ambiente de deposição e propriedades mineralógicas da formação estudada.

O afloramento estudado esta em uma mina de calcário abandonada, portanto é importante fazer um estudo da radioatividade natural para

verificar se existe risco radiológico. Esta formação é uma das principais fontes de calcário dolomítico da região sul e sudeste do país, com afloramentos no Paraná, São Paulo, Santa Catarina e Rio Grande do Sul, sendo usada como fonte de calcário para correção do solo, para construção civil e também para indústria cerâmica. Além disso, é uma importante formação sedimentar da bacia do Paraná em termos geológicos e de idade permiana, sendo inclusive fonte de uma das principais provas da teoria das placas tectônicas, através de fósseis de mamíferos aquáticos de mesma espécie encontrados no Rio Grande do Sul e na África.

## 2 REVISÃO DE LITERATURA

Carlos, D. U., Ribeiro, F. B., Saad, A. R. e Nicolai, S. H. A. (2004) fizeram um estudo da distribuição de radioatividade natural em alguns sedimentos permianos das formações Irati e Corumbataí da Bacia do Paraná, em uma coluna exposta na cidade de Limeira (SP), que apresenta 14 m da Formação Irati e 54 m da Formação Corumbataí. As massas das amostras coletadas variaram entre 2 e 5 Kg, foram secas por 24h a 58 °C e moídas até 0,250 mm, e mecanicamente homogeneizadas. As amostras moídas e homogeneizadas foram colocadas em cilindros de poliestireno com diâmetro de 9,5 cm e 5 cm de altura, e foram compactadas para encher todo o cilindro com as massas variando entre 450 e 550 g. As concentrações de urânio, tório e potássio medidas variaram respectivamente de  $1,072 \pm 0,091$  até  $12,69 \pm 0,33$  ppm,  $0,397 \pm 0,023$  até  $3,178 \pm 0,064$  ppm e de  $0,0272 \pm 0,0039$  até  $0,2357 \pm 0,0051$  % para as amostras da formação Irati, e de  $0,542 \pm 0,094$  até  $4,56 \pm 0,18$  ppm,  $0,221 \pm 0,022$  até  $15,21 \pm 0,016$  ppm e de  $0,0129 \pm 0,0037$  até  $3,463 \pm 0,017$  % para as amostras da formação Corumbataí. Os autores também mostraram que a serie do  $^{238}\text{U}$  está em desequilíbrio em muitos dos níveis da rocha exposta.

Anjos, R. M., Veiga, R., Macário, K., Carvalho, C., Sanches, N., Bastos, J., e Gomes, P. R. S. (2006) realizaram medidas de radiação gama natural em depósitos de areias de praias, com o objetivo de entender a proveniência e processo de transporte destes sedimentos ao longo de três estados brasileiros. Eles estudaram a região costeira desde o litoral norte do Espírito Santo até a litoral norte de São Paulo. Os depósitos de sedimentos Quaternários que compõem a areia destas praias são originários de rochas de embasamento cristalino de muitas litologias. Coletaram areias de 35 regiões costeiras, cobrindo cerca de 1500 Km ao longo destes três estados. As medidas foram feitas com um detector de NaI(Tl) e um HPGe com eficiência relativa de 10%. Neste estudo seus autores mostraram previamente que a razão eTh/eU não varia com o tamanho do grão da areia, com a profundidade da amostras, com a altura da praia e nem com a estação do ano.

Mostraram também que a correlação entre as concentrações de tório e potássio estão intimamente relacionadas com a composição mineral e com características petrológicas das amostras, e também que a razão eTh/eU pode ser usada como um indicador de ambiente deposicional redutor se esta razão variar entre 0 e 2, e fortemente oxidante se esta razão for muito maior que 7.

Orgun Y., Altinsoy, N., Sahin, S. Y., Gungor, Y., Gultekin, A. H., Karahan, G., Karacik, Z. (2007), estudaram radionuclídeos naturais e antropogênicos na formação granítica de Kestambol, nas rochas vizinhas e também na região costeira da cidade de Ezine na Turquia. O objetivo deles era calcular danos por radiação da radioatividade natural ambiental, uma vez que esta depende principalmente de condições geológicas e geográficas, especialmente relacionadas ao tipo de rochas e que as areias de praias são originadas geralmente em rochas magmáticas como granitos e riolitos, por exemplo. Para isto foram determinadas, a atividade do radio equivalente, a taxa de dose absorvida e o índice de danos por radiação externa. Eles coletaram quarenta e três amostras representando os tipos de formação geológica. As medidas de espectrometria gama foram feitas com um HPGe com eficiência relativa de 16%, além de medidas em *situ*. Os valores mais altos de radioatividade natural foram obtidos para os granitos, e os mais baixos para os mármore. As concentrações de atividades médias de  $^{238}\text{U}$  foram de  $174,78 \text{ Bq.Kg}^{-1}$  para as amostras graníticas e  $89,83 \text{ Bq.Kg}^{-1}$  nas rochas vulcânicas, valores estes muito maiores que a média mundial de  $35 \text{ Bq.Kg}^{-1}$ , da mesma forma as concentrações para o  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  também foram bem maiores que a média mundial. Estes altos níveis de concentração de atividade da formação de Kestambol são consistentes com sua composição mineralógica, segundo os autores. El-Arabi, A. M. (2007) aplicando um sistema de espectrometria gama de alta resolução (HPGe) quantificou vários radionuclídeos de amostras graníticas do leste do deserto do Egito com o objetivo de avaliar condições de proteção radiológica uma vez que granitos são amplamente usados na construção civil e como pedras ornamentais. Coletou trinta e nove amostras de rochas que foram medidas com um detector de HPGe, com eficiência relativa de 23%. Os resultados da concentração de atividade de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  de

algumas amostras obtiveram altas concentrações com valores médios de 3731,75, 1683,25 e 4800,88 Bq.Kg<sup>-1</sup> respectivamente, representando um alto potencial econômico.

Ribeiro, F. B., Roque, A., Boggiani, P. C., Flexor, J.M. (2001) estudaram o desequilíbrio nas séries do urânio e do tório em depósitos carbonáticos quaternários da Serra do Bodoquema e do Pantanal do Miranda, no estado do Mato Grosso do Sul, como um primeiro passo no estudo da mobilização das séries do urânio e tório em relação à hidrologia superficial. Nas medidas eles utilizaram um detector de germânio hiperpuro HPGe com eficiência relativa de 70%. Os resultados mostraram que, para a Serra do Bodoquema, o <sup>226</sup>Ra está enriquecido em relação ao <sup>238</sup>U, o calcário Pantanal do Miranda é caracterizado pela razão média de atividade <sup>238</sup>U/<sup>226</sup>Ra de 1,36 ± 0,41. Concluíram também que a série do tório está em desequilíbrio no calcário Pantanal do Miranda.

Pawell, B. A., Hughes, L. D., Soreefan, A. M., Falta, D., Wall, M., Devol, T. A. (2007) analisaram a concentração de radionuclídeos primordiais de 16 amostras de sedimento de fundo de rio, da bacia do rio Reedy próximo de Simpsonville na Carolina do Sul (USA), com o objetivo de verificar a recente descoberta de uma anomalia, (alta concentração de urânio em muitos poços privados da região). As amostras foram analisadas usando um HPGe POPTOP da Ortec e os resultados foram comparados com relatórios de UNSCEAR e NURE. Contudo somente dois dos sedimentos estudados estavam fora da faixa estabelecida pela UNSCEAR e NURE indicando que as altas concentrações de radionuclídeos naturais em água subterrâneas que suprem os poços privados locais não são significativamente afetadas pelo fluxo de sedimentos.

### 3 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

#### 3.1 PRINCÍPIOS DA RADIOATIVIDADE

##### 3.1.1 Conceitos Básicos de Radioatividade

Alguns núcleos atômicos são instáveis, e desintegram-se para formar núcleos mais estáveis de um isótopo diferente. Nuclídeos com esta característica são chamados de radionuclídeos, e este processo é chamado de decaimento nuclear ou desintegração radioativa. A lei do decaimento radioativo expressa a diminuição do número de átomos de um radionuclídeo com o tempo.

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

onde  $N_t$  é o número de átomos presentes após um dado tempo  $t$ (s),  $N_0$  é o número de átomos presentes no tempo inicial em  $t = 0$  e  $\lambda$  é a constante de decaimento do radionuclídeo ( $s^{-1}$ ). Além disso é definida uma outra grandeza que é bastante usada, a meia vida  $T_{1/2}$  (s), que é o tempo para metade dos radionuclídeos decaírem.

$$T_{1/2} = \frac{0,693}{\lambda} \quad (2)$$

O produto  $\lambda N$  fornece a atividade em Bequerel (Bq), que é o número de desintegrações por segundo do radionuclídeo. É importante salientar que o decaimento radioativo é um processo que ocorre independente de outras condições físicas do núcleo (IAEA TECDOC, 2003).

### 3.1.2 Tipos de Decaimento Radioativo

Na desintegração nuclear o processo desenrola-se espontaneamente e exclusivamente no núcleo do átomo. Os tipos de radiação emitidos são dois; *radiações corpusculares*: elétrons ou beta menos ( $e^-$  ou  $\beta^-$ ), pósitrons ou beta mais ( $e^+$  ou  $\beta^+$ ), nêutrons (n), prótons (p), partículas alfa ( $\alpha$ ), íons pesados; e *radiações eletromagnéticas*: radiação gama, no processo subsequente de desexcitação do núcleo residual.

#### · Desexcitação Gama

Quase todos os estados excitados dos núcleos podem decair para estados menos excitados por emissão espontânea de radiação eletromagnética, cuja energia pertence à parte do espectro eletromagnético denominado radiação gama. A desexcitação nuclear resulta na emissão de radiação gama, da mesma forma que a desexcitação atômica resulta na emissão de fótons de comprimento de onda desde o ultravioleta até o infravermelho. A diferença entre a radiação gama e os fótons atômicos é a energia ou comprimento de onda entre eles, e decorre de que a separação dos níveis nucleares é da ordem de MeV, enquanto no caso dos níveis atômicos é da ordem de grandeza de eV até keV.

Qualquer radiação eletromagnética, não importando em que posição do espectro se encontre, pode ser caracterizada pelo comprimento de onda ( $\lambda$ ), frequência ( $\nu$ ) ou energia equivalente (E).

$$\begin{aligned} c &= \nu \cdot \lambda \\ E &= h \cdot \nu \end{aligned} \tag{3}$$

onde: c = velocidade da radiação eletromagnética, h = constante de Planck.

A radiação gama ( $\gamma$ ) é o principal (mas não o único) processo de liberação de energia em excesso presente no núcleo de um átomo que, como

mostrado teoricamente na mecânica quântica e verificado experimentalmente, é feita na forma de radiação eletromagnética com energia definida.

A emissão de radiação gama normalmente segue uma desintegração  $\beta$  ou  $\alpha$ , visto que o núcleo, após uma desintegração, é em geral deixado em um estado excitado e passa para um estado menos excitado emitindo um ou mais raios  $\gamma$  até atingir o estado fundamental.

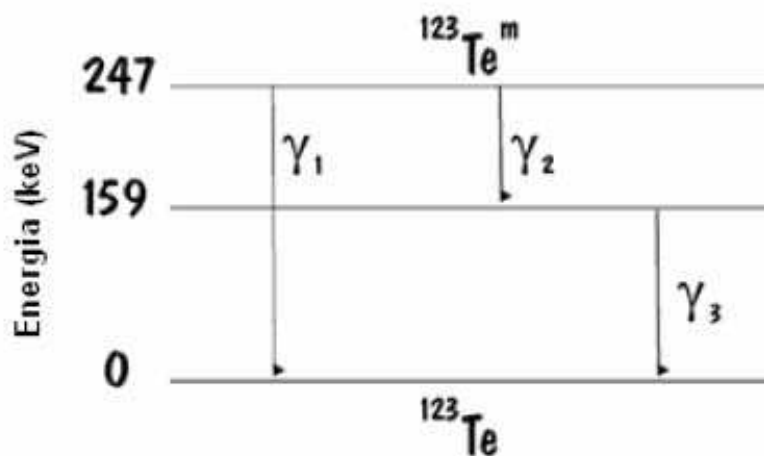
De modo geral, a radiação eletromagnética do núcleo é separada em tipos distintos chamados de radiação multipolar. Esta separação é feita de acordo com a quantidade de momento angular  $L$  carregado por cada raio  $\gamma$  emitido, ou seja, um raio  $\gamma$  com uma certa energia pode ser emitido 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 tem somente valores inteiros de momento angular  $L$  dado pela relação  $|J_i - J_f| \leq L \leq |J_i + J_f|$  onde  $J_i$  e  $J_f$  são os números quânticos de spin do estado inicial e final, respectivamente, do núcleo emissor. As transições gama entre os estados  $J_i = 0$  e  $J_f = 0$  são proibidas como consequência do fato que as ondas eletromagnéticas serem de natureza transversal.

As radiações multipolares são caracterizadas pela sua ordem dada por  $2L$ . A ordem representa o tipo de múltiplo que é o emissor da radiação eletromagnética. Para cada valor de momento angular  $L$ , existem duas classes de radiação, a radiação do tipo elétrica (E) e a radiação do tipo magnética (M). Estas radiações diferem pelas suas paridades. A radiação elétrica tem paridade par quando o momento angular é par, tem paridade ímpar quando o momento angular é ímpar. A radiação magnética tem paridade ímpar quando o momento angular é par, e tem paridade par quando o momento angular é ímpar. A paridade para a radiação elétrica é dada por  $(-1)^L$  e para a radiação magnética é dada por  $-(-1)^L$  ou  $(-1)^{L+1}$ , onde  $+1$  significa paridade par e  $-1$  significa paridade ímpar.

Alguns radionuclídeos podem ter mais que um modo de desintegração. Mas, independentemente do tipo de radiação, a meia vida

observada é sempre a mesma. Desintegração radioativa freqüentemente também ocorre em série com filhos radioativos que terminam em um isótopo estável. Dado um elemento pai, os filhos da série tendem a estabelecer um equilíbrio radioativo quando a meia vida do núcleo pai for muito maior que a do núcleo filho (equilíbrio secular). Assim, a atividade do pai e de todos os filhos tem que ser idênticas caso exista um equilíbrio radioativo. Desta forma podemos determinar a atividade do pai medindo a atividade de qualquer filho. Na figura 1 é mostrado um esquema de desintegração em que existe mais de uma maneira de o núcleo desexcitar até o estado fundamental. Exemplos de séries radioativas mais comuns são as séries dos radionuclídeos naturais:  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ .

No entanto, a estabilidade nuclear não é alcançada apenas com a emissão de radiação gama, pois esta somente libera o excesso de energia, o que não fornece estabilidade ao núcleo. A estabilidade de um núcleo só é alcançada variando a proporção entre nêutrons e prótons. Se um núcleo possui excesso de nêutrons ou de prótons estará sujeito a desintegração radioativa por emissão de partículas  $\alpha$  ou de partículas  $\beta$  de modo a alcançar a condição de maior estabilidade.



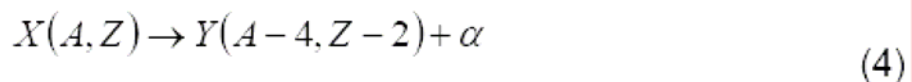
**Figura 1** – Exemplo de transição gama em cascata.

Caso o núcleo excitado possua um excesso de nêutrons, o processo para estabilizá-lo será uma desintegração do tipo  $\beta^-$ . No caso de haver excesso de prótons poderia haver três processos para alcançar a estabilidade, são eles: desintegração  $\beta^+$ , captura eletrônica e desintegração alfa ( $\alpha$ ) para núcleos pesados.

#### · Desintegração Alfa

As partículas alfa ( $\alpha$ ) são núcleos de átomos de hélio. A distância que uma partícula alfa percorre antes de parar é chamada de alcance. Num dado meio, partículas alfas de igual energia têm o mesmo alcance. Portanto, aumentando-se a energia das partículas alfas, aumenta-se o alcance para um dado meio, por outro lado, fixando-se a energia da partícula alfa, o alcance diminui se a densidade do meio aumentar. O alcance das partículas alfa é muito pequeno, ou seja, pouco penetrante, assim elas são facilmente blindadas (Appoloni, 2006). Devido ao valor alto da energia de ligação da partícula alfa (28,3 MeV) a emissão espontânea alfa torna-se possível para o estado fundamental para núcleos com número de massa maior ou da ordem de 150. Contudo, para que tal emissão seja efetiva, a partícula alfa precisa vencer a barreira

Coulombiana criada pelo núcleo residual. Após a desintegração, o núcleo residual terá uma massa quatro unidades menor e uma carga duas unidades menor daquelas do núcleo original. A mudança no número de prótons impõe que o elemento filho é distinto do pai, processo este que denomina-se transmutação. A equação 4 mostra uma desintegração alfa de um elemento genérico X (A, Z).



Quando ocorre desintegração alfa em um núcleo ocorre liberação de energia. Medidas cuidadosas mostram que a soma das massas do núcleo filho e a da partícula alfa é ligeiramente menor que a massa do núcleo pai.

A relação de Einstein,  $E = m.c^2$ , explica o ocorrido, mostrando que a diferença de massa no processo é convertida em energia cinética dos produtos da reação. Estas partículas, devido à desintegração ser um processo de dois corpos, exibem um espectro de energia monoenergético, na região entre 4 e 6 Mev.

#### · **Desintegração Beta**

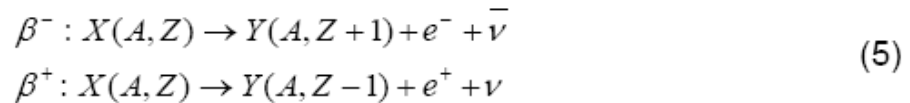
Partículas betas são partículas carregadas emitidas pelo núcleo, em módulo com a mesma carga e massa de um elétron. Como a massa do elétron é uma pequena fração da massa do núcleo, então a massa é alterada por uma quantidade muito pequena. Visto que o núcleo não possui elétrons, seu número de massa não será alterado durante a desintegração beta. As partículas betas podem ser elétrons ou pósitrons e são muito mais penetrantes que as partículas alfa. Ao passar por um meio material a partícula beta também perde energia ionizando os átomos que encontra no caminho. A blindagem se torna suficiente com a utilização de películas de plástico ou alumínio. A densidade de ionização provocada é muito menor que as partículas alfa e, com a mesma energia inicial, seus percursos são muito maiores que o das partículas alfa.

O tratamento estatístico do processo de perda de energia é extremamente complexo devido à trajetória ser tortuosa em decorrência de colisões que ocorrem durante o percurso e a pequena massa da partícula. Essas colisões (excitação ou ionização) podem reduzir a energia da partícula beta a zero em uma curta distância ou em uma distância correspondente ao máximo de penetração.

Durante sua trajetória pode ocorrer o fenômeno de “*Bremsstrahlung*”, que aumenta com a energia da partícula beta e com o número atômico do absorvente. Quando a partícula beta colide com átomos do material por onde está atravessando, a energia perdida é emitida e forma um espectro contínuo de radiação eletromagnética denominado *Bremsstrahlung*.

Partículas betas de um mesmo núcleo são emitidas com energias variáveis de espectro contínuo, para cada radionuclídeo e, o restante da energia é

carregada com os neutrinos. A equação 5 mostra as duas formas de desintegração beta,  $\beta^+$  e  $\beta^-$ , para um elemento genérico X (A, Z).



Na figura 2 é mostrada a distribuição dos momentos das partículas beta para um dado emissor. Se fizermos uma análise desta distribuição, veremos que existe um certo número de linhas estreitas, aparentemente homogêneas, superpostas a uma distribuição contínua com um limite superior dado. Essas linhas são chamadas linhas de conversão interna e estão associadas com a desexcitação do núcleo filho e não com o processo em si de emissão beta pelo núcleo pai. A conversão interna é um processo alternativo de desexcitação do núcleo.



**Figura 2** – Representação esquemática da distribuição do momento das partículas beta emitidas por uma fonte radioativa adaptada de Appoloni, (2006).

O nome desintegração beta também é aplicado à captura pelo núcleo de um elétron orbital, no entanto, neste caso, o processo é denominado captura eletrônica na desintegração beta. A captura eletrônica é o processo pelo qual um próton do núcleo captura um elétron da camada K ou L, sendo que a captura de um elétron da camada K tem uma maior probabilidade de ocorrer

devido ao fato desta camada estar mais próxima do núcleo, processo este denominado de captura K. O resultado é a substituição de um próton do núcleo por um nêutron:



A captura eletrônica é seguida pela emissão de radiação eletromagnética pelo núcleo filho. O efeito da captura eletrônica sobre o núcleo é idêntico ao efeito produzido pela emissão  $\beta^+$ .

### 3.1.3 Passagem da Radiação através da Matéria

A radiação interage com a matéria em termo de seus constituintes básicos, i.e., como um agregado de elétrons e núcleo. Dependendo do tipo de radiação, sua energia e tipo de material, as reações podem ocorrer com o átomo ou com o núcleo, ou com seus constituintes individuais.

A colisão ou interação entre duas partículas é geralmente descrita em termos da seção de choque, representada pela letra grega minúscula sigma ( $\sigma$ ). Esta quantidade representa a medida da probabilidade para a reação ocorrer e pode ser calculada se a forma da interação básica entre as partículas é conhecida. Formalmente, a seção de choque diferencial é definida como a razão,

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(E, \Omega) = \frac{1}{F} \frac{dN_s}{d\Omega} \quad (7)$$

Isto é, a fração média de partículas espalhadas (dNs) dentro do ângulo sólido diferencial ( $d\Omega$ ) por unidade de tempo por unidade de fluxo (F). Integrando sobre todo o ângulo sólido, temos a seção de choque total (Leo, 1994).

$$\sigma(E) = \int d\Omega \frac{d\sigma}{d\Omega} \quad (8)$$

O comportamento de fótons na matéria (neste caso, raios-X e raios-gama), é drasticamente diferente do de partículas carregadas. Fótons não tem carga elétrica, o que torna impossível sofrerem múltiplas colisões inelásticas com os elétrons atômicos e são muitas vezes mais penetrantes na matéria do que as partículas carregadas.

Embora um grande número de mecanismos de interação de raios gama com a matéria sejam conhecidos, somente três tem um papel importante na faixa de energia dos raios gamas considerados neste trabalho: Efeito Fotoelétrico, Espalhamento Compton e Produção de Pares. Todos estes processos conduzem a transferência total ou parcial da energia dos raios gamas para os elétrons no material.

A passagem da radiação eletromagnética através da matéria se caracteriza por uma absorção exponencial:

$$I = I_0 \exp(-\mu x) \quad (12)$$

Onde  $\mu$  é o coeficiente de atenuação,  $x$  é a espessura do material e  $I_0$  é a intensidade do feixe incidente. Deve-se introduzir também  $\mu' = \frac{\mu}{\rho}$  onde  $\mu'$  é o coeficiente de atenuação de massa e  $\rho$  é a densidade do material. Os dois processos que produzem a atenuação da energia são; absorção: resulta na conversão direta ou total, da energia dos fótons em energia cinética de outras partículas; espalhamento: o fóton é desviado de sua trajetória normal elástico ou inelásticamente. Escrevendo o coeficiente de atenuação em função das secções de choques dos processos de interação, temos:

$$\mu' = N(\sigma_R + \sigma_F + \sigma_p) + ZN\sigma_C \quad (11)$$

Onde  $N$  é o número de átomos absorventes por  $m^3$  e  $\sigma_R$ ,  $\sigma_F$ ,  $\sigma_p$  e  $\sigma_C$  são respectivamente as secções dos processos de interações, Espalhamento Rayleigh, Efeito Fotoelétrico, Produção de Pares e Espalhamento Compton (Appoloni, 2006), onde o primeiro não tem papel importante na faixa de energia considerada neste trabalho.

#### · **Efeito Fotoelétrico**

No processo de absorção fotoelétrica, o fóton sofre uma interação com o átomo absorvedor e desaparece completamente, em seu lugar um fóton-elétron energético é ejetado pelo átomo de uma de suas camadas ligadas. Esta interação ocorre com elétrons ligados (geralmente camada K), e não pode ocorrer com elétrons livres. A energia do fóton-elétron é dada por.

$$E_e = h\nu - E_b \quad (9)$$

Onde  $E_b$  é a energia de ligação do fóton-elétron em sua camada original. Em adição ao foto-elétron, a interação cria uma vacância em uma de suas camadas, que rapidamente é preenchida através da captura de um elétron livre do meio e ou das camadas próximas do átomo, assim um ou mais raios-X característicos podem ser gerados.

#### · **Espalhamento Compton**

No espalhamento Compton o gama incidente interage com um elétron no material absorvedor, é o mecanismo de interação predominante para energias de raios gamas típicos de radionuclídeos. No espalhamento Compton o raio gama é defletido através de um ângulo  $\theta$  com respeito a sua direção original. O fóton transfere uma parte de sua energia para o elétron (o elétron então recua,

“recoil electron”). Como todos os ângulos são possíveis, a energia transferida para o elétron pode variar de 0 até grandes frações da energia do raio gama incidente. A expressão que relaciona a energia transferida e o ângulo de espalhamento para uma dada interação pode ser simplesmente derivada das equações de conservação de energia e momento.

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

Onde  $m_0c^2$  é a energia de repouso do elétron (0,511 MeV),  $h\nu'$  a energia do fóton espalhado e  $h\nu$  a energia do fóton incidente.

#### · Produção de Pares

Se a energia do raio gama é maior que duas vezes a massa de repouso do elétron (1,02 MeV), este processo é energeticamente possível no campo do núcleo. Assim este processo é predominante para raios gama com alta energia. Na interação o raio gama desaparece e é substituído por um par elétron-positron. Devido à aniquilação do positron dois fótons são normalmente produzidos como produtos secundários desta interação (Knoll, 2000).

### 3.1.4 Natureza Estatística do Decaimento Radioativo

O decaimento radioativo é um fenômeno estatístico, cada desintegração atômica durante o decaimento radioativo ocorre completamente independente de qualquer outro evento, além disso o intervalo entre desintegrações não é constante. Para um número muito grande de desintegrações radioativas aleatórias de um particular radionuclídeo, a frequência de decaimento é dada pela Distribuição de Poisson: se  $\bar{n}$  é a taxa média de decaimento, P a

probabilidade e  $n$  o número de núcleos atômicos que decaíram na unidade de tempo, temos.

$$P(n) = \frac{\bar{n}^n}{n!} \exp(-\bar{n}) \quad (13)$$

Para a distribuição de Poisson a variância ( $\sigma^2$ ) é igual o valor médio, e  $\sigma$  é o desvio padrão. A região de  $\pm 1\sigma$  em torno da média abrange 68.3 % da distribuição,  $\pm 2\sigma$  abrange 95.5 % da distribuição, e  $\pm 3\sigma$  abrange 99.7 % da distribuição. A emissão de partículas e raios-gama no decaimento radioativo é proporcional ao número de desintegrações atômicas, e o desvio padrão pode ser usado para estimar a região de desvios e erros em medidas radiométricas. Se  $N$  contagens são registradas em um tempo  $t$ , então o desvio padrão das contagens registradas será.

$$\sigma(N) = \sqrt{N} \quad (14)$$

onde  $\bar{N}$  é o valor esperado do número de contagens (contagem média de repetidas medidas). O desvio padrão fracional da contagem (erro da medida de  $N$ ) será:

$$\frac{\sigma(N)}{N} = \frac{1}{\sqrt{N}} \quad (15)$$

Para uma taxa de contagem  $n = N/t$  (c/s), o desvio padrão é dado por

$$\sigma(n) = \frac{\sqrt{N}}{t} = \sqrt{\frac{n}{t}} \quad (16)$$

e o desvio padrão fracional da taxa de contagem  $n$  (erro da medida de  $n$ ) é:

$$\frac{\sigma(n)}{n} = \frac{1}{\sqrt{nt}} \quad (17)$$

As equações (14) e (17) indicam que a precisão de medidas radiométricas podem ser aumentadas, através de uma ou mais das seguintes maneiras, aumentando o número de contagens, (N), aumentando a taxa de contagens, (n), ou aumentando o tempo de contagem, (t) (IAEA TECDOC, 2003).

### 3.1.5 Fontes Naturais de Radiação

Os dois principais contribuintes para a radiação natural são os radionuclídeos cosmogênicos e os radionuclídeos primordiais. Os radionuclídeos cosmogênicos surgem da interação dos raios cósmicos com partículas na atmosfera. Em geral espécies mais leves, como  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$  e  $^{22}\text{Na}$ , do que o núcleo alvo (primariamente nitrogênio, oxigênio e argônio) são produzidos por interações de espalação de alta energia. A produção é maior na alta estratosfera, mas alguns nêutrons cósmicos energéticos e prótons chegam à baixa atmosfera. Esta taxa de produção não depende unicamente da altitude, mas também da latitude e da variação do ciclo solar, como mostrado na tabela 1.

**Tabela 1** – Principais Radionuclídeos Cosmogênicos adaptado de Kathren, (1988)

Isótopo	Meia-vida (a- anos, d- dias)	Taxa de Produção (átomo/cm <sup>2</sup> s)	Inventário Global (kg)	Concentração no ar (Bq/m <sup>3</sup> )
<sup>3</sup> H	12,26 a	0,25	3,5	0,167
<sup>7</sup> Be	53 d	0,08	0,0032	0,0017
<sup>10</sup> Be	2,5 x 10 <sup>5</sup> a	0,05	3,9 x 10 <sup>5</sup>	10 <sup>-7</sup>
<sup>14</sup> C	5760 a	2,5	6,8 x 10 <sup>4</sup>	0,067
<sup>22</sup> Na	2,6 a	8,6 x 10 <sup>-5</sup>	0,0019	1,7 x 10 <sup>-6</sup>
<sup>26</sup> Al	7,4 x 10 <sup>5</sup> a	1,4 x 10 <sup>-5</sup>	1000	-
<sup>32</sup> Si	280 a	1,6 x 10 <sup>-4</sup>	1,4	3,3 x 10 <sup>-8</sup>
<sup>32</sup> P	14,3 d	8,1 x 10 <sup>-4</sup>	0,0004	0,00033
<sup>33</sup> P	24,4 d	6,8 x 10 <sup>-4</sup>	0,0006	0,00025
<sup>35</sup> S	87,9 d	0,0014	0,0045	0,00025
<sup>36</sup> Cl	3,8 x 10 <sup>5</sup> a	0,0011	1,4 x 10 <sup>4</sup>	5 x 10 <sup>-10</sup>
<sup>39</sup> Ar	270 a	0,0056	23	-
<sup>81</sup> Kr	2,1 x 10 <sup>5</sup> a	10 <sup>-5</sup>	16,2	-
<sup>40</sup> K	1,3 x 10 <sup>9</sup> a	-	-	-

Os radionuclídeos naturais de origem terrestres, (também chamados de radionuclídeos primordiais, pois estavam presentes na formação da Terra), estão presentes em vários níveis em todo o meio ambiente, incluindo o próprio corpo humano.

A tabela 2 apresenta os radionuclídeos primordiais isolados.

**Tabela 2** – Radionuclídeos primordiais isolados que ocorrem naturalmente adaptado Kathren, (1988)

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

Do ponto de vista biológico-ambiental, somente dois destes radionuclídeos isolados que ocorrem naturalmente são significantes: <sup>40</sup>K e o <sup>87</sup>Rb, sendo o <sup>40</sup>K o mais importante, pelo menos do ponto de vista biológico. Dos três isótopos naturais do potássio, o <sup>40</sup>K é o único radioativo, com meia-vida de 1,28 x 10<sup>9</sup> anos e uma abundância isotópica de 0,0118%, que resulta numa atividade específica de 31,4 Bq/g no solo.

O <sup>40</sup>K decai para o <sup>40</sup>Ca, com 89% de probabilidade, por emissão beta menos que tem energia de 1314 keV. Com exceção de uma pequena fração (1 x 10<sup>-3</sup>%) que decai por captura eletrônica, os 11% restantes do <sup>40</sup>K decai por emissão beta mais para o <sup>40</sup>Ar num estado excitado, que emite um fóton característico de 1460 keV, que é muito útil para identificação e quantificação do

$^{40}\text{K}$  por espectrometria gama, além de fornecer um excelente ponto de calibração, uma vez que o potássio está presente em quase todas as amostras ambientais.

A concentração de potássio no solo tem sido alterada pelas atividades agrícolas, particularmente por meio da aplicação de fertilizantes, o que tem aumentado o conteúdo de potássio de uma ordem de magnitude em solos sob cultivo há 20 anos.

O potássio, e então o  $^{40}\text{K}$ , é encontrado em todos os sistemas biológicos. Um homem de 70 kg contém em torno de 140 g de potássio, principalmente nos músculos, o que corresponde a 4,4 kBq de  $^{40}\text{K}$  no corpo (Katheren, 1988).

Além dos radionuclídeos cosmogênicos e primordiais, existem os radionuclídeos das séries radioativas naturais. Três das quatro séries naturais são encontradas na natureza: a do  $^{238}\text{U}$  (abundância natural de 99,27%), a do  $^{235}\text{U}$  (abundância natural de 0,7%) e a do  $^{232}\text{Th}$  (abundância natural 100%). Na Tabela 3, estão relacionadas às quatro séries radioativas, seus nuclídeos iniciais, finais e seu número de massa.

**Tabela 3** – Produtos iniciais e finais das séries radioativas adaptado de Burcham, (1974)

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

Apenas os radionuclídeos com meia vida comparável a idade da Terra e seus filhos, existem em quantidade significativa, portanto a série do Netúnio não pode mais ser observada na natureza, devido à sua meia vida ser menor que a idade da formação da Terra.

A dose de radiação devida a fontes externas é principalmente devida à radiação gama dos radionuclídeos das séries do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$  e da linha única do  $^{40}\text{K}$ . As Tabelas 4, 5 e 6 mostram as séries dos radionuclídeos  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$  respectivamente.

**Tabela 4** – Série radioativa do  $^{238}\text{U}$ , modificado de IAEA TECDOC (2003)

Radionuclídeo	Modo de decaimento	Meia Vida	Gama (MeV)	$P_{\gamma}$ (%)
$^{238}\text{U}$	Alfa	$4,468 \times 10^9$ anos	–	–
$^{234}\text{Th}$	Beta	24,1 dias	0,063 0,093	3,5 4
$^{234}\text{Pa}$	Beta	1,17 minutos	0,765 1,001	0,30 0,60
$^{234}\text{Pa}$	Beta	6,7 horas	0,10 0,70 0,90	50 24 70
$^{234}\text{U}$	Alfa	$2,48 \times 10^5$ anos	0,053	0,2
$^{230}\text{Th}$	Alfa	$7,52 \times 10^4$ anos	0,068 0,142	0,6 0,07
$^{226}\text{Ra}$	Alfa	1602 anos	0,186	4
$^{222}\text{Rn}$	Alfa	3,823 dias	0,510	0,07
$^{218}\text{Po}$	Alfa e beta	3,05 minutos	–	–
$^{214}\text{Pb}$	beta	26,8 minutos	0,295 0,352	0,19 36
$^{218}\text{At}$	Alfa e beta	2 segundos	–	–
$^{214}\text{Bi}$	Beta Alfa	19,7 minutos	0,609 1,120 1,764	47 17 17
$^{214}\text{Po}$	alfa	164 microsegundos	0,799	0,014
$^{210}\text{Tl}$	Beta	1,3 minutos	0,296 0,795 1,31	80 100 21
$^{210}\text{Pb}$	Alfa e beta	~22 anos	0,047	4
$^{210}\text{Bi}$	Alfa e beta	5,01 dias	–	–
$^{210}\text{Po}$	Alfa	138,4 dias	0,803	0,0011
$^{210}\text{Tl}$	Beta	4,19 minutos	–	–
$^{206}\text{Pb}$	–	Estável	–	–

**Tabela 5** – Série radioativa do  $^{235}\text{U}$ , modificado de IAEA TECDOC (2003).

Radioisótopo	Modo de decaimento	Meia Vida	Gama (MeV)	$P_{\gamma}$ (%)
$^{235}\text{U}$	Alfa	$7,038 \times 10^8$ anos	0,143 0,185 0,204	11 54 5
$^{231}\text{Th}$	Beta	25,6 horas	0,026 0,084	2 10
$^{231}\text{Pa}$	Alfa	$3,43 \times 10^4$ anos	0,027 0,29	6 6
$^{227}\text{Ac}$	Alfa e beta	21,6 anos	0,070	0,08
$^{227}\text{Th}$ (98,6%) $^{223}\text{Fr}$ (1,2%)	Alfa	18,2 dias	0,050 0,237 0,31	8 15 8
$^{223}\text{Ra}$	Alfa e beta	22 minutos	0,050 0,080 0,234	40 13 4
$^{223}\text{Ra}$	Alfa	11,68 dias	0,149 0,270 0,33	10 10 6
$^{219}\text{Rn}$	Alfa	3,92 segundos	0,272 0,401	9 5
$^{215}\text{Po}$	Alfa	1,83 milisegundos	–	–
$^{211}\text{Pb}$	Beta	36,1 minutos	0,405 0,427 0,832	3,4 1,8 3,4
$^{211}\text{Bi}$	Alfa e beta	2,15 minutos	0,351	14
$^{211}\text{Po}$ (0,28%) $^{207}\text{Tl}$ (99,7%)	Alfa	0,52 segundos	0,570 0,90	0,5 0,5
$^{207}\text{Pb}$	Beta	4,79 minutos	0,897	0,16
$^{207}\text{Pb}$	–	Estável	–	–

**Tabela 6** – Série radioativa do  $^{232}\text{Th}$ , modificado de IAEA TECDOC (2003).

Radioisótopo	Modo de decaimento	Meia Vida	Gama (MeV)	$P_\gamma$ (%)
$^{232}\text{Th}$	Alfa	$1,39 \times 10^{10}$ anos	-	-
$^{228}\text{Ra}$	Beta	5,75 anos	-	-
$^{228}\text{Ac}$	Beta	6,13 horas	0,34 0,908 0,96	15 25 20
$^{228}\text{Th}$	Alfa	1,91 anos	0,084 0,214	1,6 0,3
$^{224}\text{Ra}$	Alfa	3,64 dias	0,241	3,7
$^{220}\text{Rn}$	Alfa	55,6 segundos	0,55	0,07
$^{216}\text{Po}$	Alfa	0,15 segundos	-	-
$^{212}\text{Pb}$	Beta	10,64 horas	0,239 0,300	47 3,2
$^{212}\text{Bi}$	Alfa e beta	60,5 minutos	0,040 0,727 1,620	2 7 1,8
$^{212}\text{Po}$ (64,06%)	Alfa	304 nanosegundos	-	-
$^{208}\text{Tl}$ (35,94%)	Beta	3,1 minutos	0,511 0,583 0,860 2,614	23 86 12 100
$^{208}\text{Pb}$	-	Estável	-	-

### 3.1.6 Desequilíbrio Radioativo das Séries

O desequilíbrio radioativo de uma série ocorre quando um ou mais produtos de decaimento da série é completa ou parcialmente removido ou adicionado ao sistema. Muitos processos geológicos, como intemperismo e

precipitação mineral, não representam sistemas fechados para trocas geoquímicas do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$ , podendo causar grandes desequilíbrios, além disso processos químicos e físicos como o recuo do núcleo após uma emissão alfa, difusão, dissolução química da matriz mineral por águas subterrâneas e processos da absorção, que continuamente agem em materiais geológicos, pode também causar desequilíbrios. A série do Tório raramente ocorre em desequilíbrio na natureza, contudo nas séries do Urânio o desequilíbrio é comum e pode ocorrer em muitas posições. O  $^{238}\text{U}$  pode ser seletivamente lixiviado em relação ao  $^{234}\text{U}$ ,  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  e também em relação ao  $^{222}\text{Rn}$  (Gás Radônio) que é móvel e pode escapar para a atmosfera. Dependendo da meia vida dos radionuclídeos envolvidos, eles podem levar dias, semanas ou até milhões de anos para que o equilíbrio seja restabelecido.

O desequilíbrio na série do Urânio é uma séria fonte de erro em espectrometria gama, uma vez que as concentrações de Urânio são, em geral, estimadas com base em medidas da abundância de  $^{214}\text{Bi}$  e  $^{214}\text{Pb}$ , que ocorrem muito abaixo na cadeia de decaimento, ver tabela 3, e podem não estar em equilíbrio com o Urânio. Assim as estimativas da concentração de Urânio são reportadas como equivalente Urânio (eU) e estas estimativas são baseadas na suposição das condições de equilíbrio. Concentrações de Tório também são reportadas com equivalente tório (eTh) embora as cadeias de decaimento do Tório estejam quase sempre em equilíbrio.

### 3.1.7 Localização na Natureza

A maioria das rochas, solos, sedimentos e minérios contêm concentrações significativas de urânio e tório, e como consequência dos decaimentos, estes materiais vão conter também os radionuclídeos pertencentes às famílias radioativas (Tauhata, 2003). O potássio está amplamente distribuído

na crosta terrestre com concentrações que variam de 0,1% para calcários, a mais de 4% para alguns granitos (Klemente, 1982).

### 3.2 RADIOATIVIDADE E AS ROCHAS

O urânio, tório e potássio são os principais radionuclídeos contribuintes para a radioatividade natural das rochas. Todos eles são litófilos e estão concentrados preferencialmente nas rochas ígneas ácidas, em relação às intermediárias, básicas e ultrabásicas. A radioatividade das rochas ígneas apresenta uma considerável variação em função das características químicas, mineralógicas, petrográficas e estruturais. A abundância de urânio e tório nas rochas ígneas, além da concentração inicial, depende sobretudo da história póscristalização das rochas. Os níveis radioativos podem ser relacionados a alguns fatores tais como: conteúdo de  $\text{SiO}_2$ ; idade relativa numa série consangüínea. Esta radioatividade provém de três fontes: minerais acessórios moderadamente radioativos; minerais essenciais fracamente radioativos; material radioativo localizado entre os grãos e em defeitos estruturais do cristal. Algumas fontes de urânio e tório também podem estar presentes em inclusões líquidas nos minerais e em fluidos intergranulares. O potássio é um elemento muito freqüente nos minerais, principalmente nos alumino-silicatos como os K-feldspatos e as micas. O conteúdo de  $\text{K}_2\text{O}$  nas rochas graníticas varia de cerca de 0,5% nos leucogranitos sódicos até mais de 8% nos leucogranitos potássicos. Riólitos e Sianitos potássicos também contém 8% ou mais de  $\text{K}_2\text{O}$ . Nos sedimentos em geral a concentração variável dos radionuclídeos reflete a origem desses sedimentos, o ambiente deposicional e a evolução da bacia. Nos carbonatitos, os minerais radioativos são principalmente o pirocloro e a monazita e, secundariamente, zircão, badeleita, alanita, perokita e spheno. Nos sedimentos arenosos, o teor de urânio geralmente é menor que 1 ppm devido à facilidade de lixiviação desse elemento. Contudo quando os sedimentos são derivados de

rochas ígneas contendo minerais resistentes de urânio e tório, pode ocorrer concentrações anormais desses elementos. Arenitos ricos em matéria orgânica também podem apresentar radioatividade alta devido à precipitação do urânio em ambiente redutor. Nos sedimentos de granulação mais fina, por exemplo, os folhelhos, o urânio é fixado na matéria orgânica, atingindo concentrações na faixa de 30 a 60 ppm (Vasconcelos, 1994).

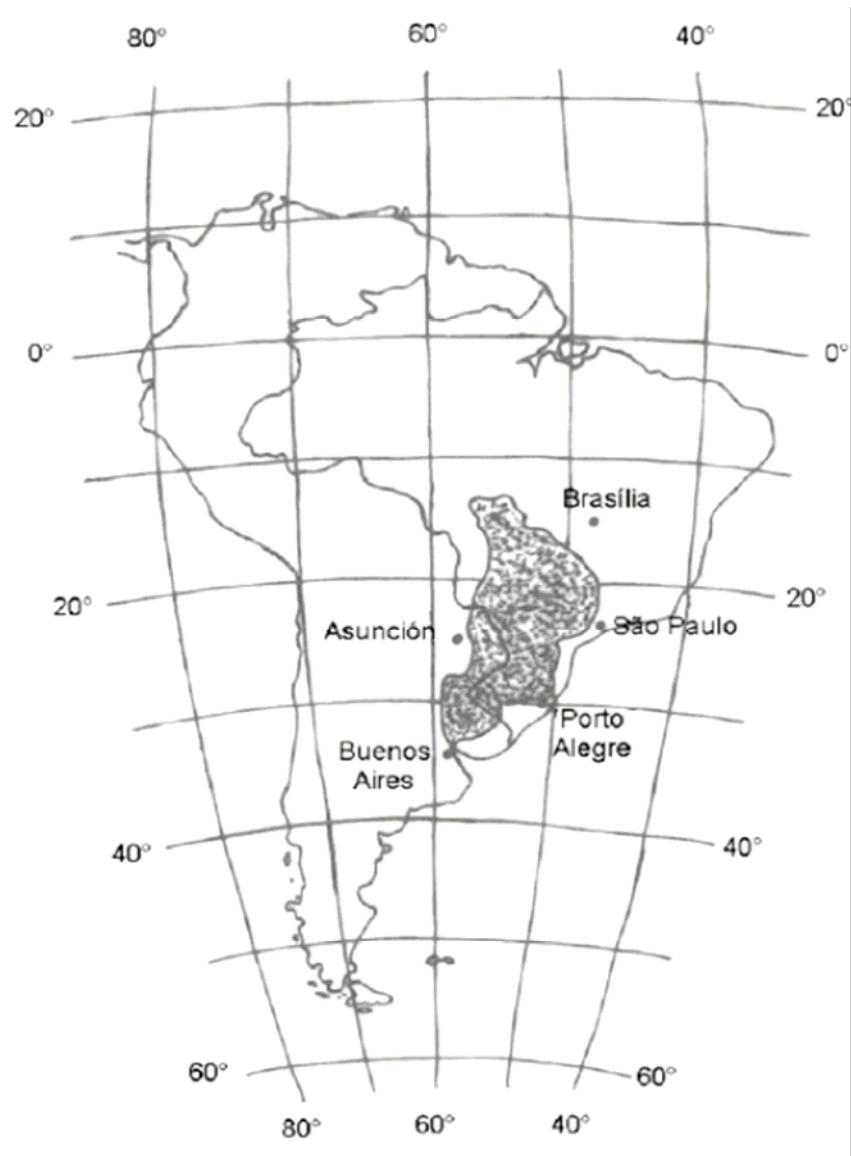
### 3.2.1 A Geoquímica dos Radionuclídeos

A principal ocorrência de K em rochas é nos feldspatos potássicos (principalmente no ortoclásio e no microclínio com ~ 13% de K) e nas micas (biotita e muscovita com aproximadamente 8% de K). O potássio está praticamente ausente em minerais máficos. Em decorrência, é relativamente alto em rochas félsicas (granitos), mas baixo em basaltos e muito baixo em dunitos e peridotitos. O urânio apresenta dois estados de valência  $U^{+4}$  e  $U^{+6}$ . A forma reduzida  $U^{+4}$  geralmente está contida em minerais insolúveis, enquanto que a forma oxidada  $U^{+6}$ , complexa-se com anions como sulfatos, carbonatos e fosfatos formando algumas espécies solúveis. Esta mobilidade do  $U^{+6}$  é modificada pela adsorção a óxidos hidratados de ferro, minerais de argila e colóides assim como pela redução a minerais de  $U^{+4}$  quando se depara em ambientes redutores. A sua presença nas rochas ocorre como: óxidos e silicatos, uraninita e uranotorita; principalmente em minerais como a monazita, o xenotímeo e o zircão; como quantidades traço em outros minerais formadores de rocha; ou ainda ao longo dos limites dos grãos, possivelmente como óxidos ou silicatos de urânio. O tório apresenta dois estados de valência  $Th^{+3}$  e  $Th^{+4}$ , entretanto, o último é de grande importância, uma vez que o primeiro é raro na natureza. A solubilidade dos complexos de tório é geralmente baixa, exceto em soluções ácidas. O tório pode ocorrer em alanita, monazita, xenotímeo e zircão, em níveis maiores que 1000 ppm ou em quantidades-traço em outros minerais constituintes das rochas. Os

principais minerais que contém Th (monazita e zircão) são estáveis durante o intemperismo e podem acumular-se em depósitos de minerais pesados. O tório não é afetado por condições redutoras, e permanece insolúvel na forma  $\text{Th}^{+4}$ , contudo o  $\text{U}^{+6}$  nestas condições é reduzido na forma  $\text{U}^{+4}$ , causando o enriquecimento de urânio nestes regiões redutoras. Dessa forma a razão Th /U é usada como um indicador das condições redutoras ou oxidativas de determinada região (Adams, 1958).

### **3.2.2 Rochas da Bacia do Paraná**

A bacia sedimentar do Paraná corresponde a uma extensa depressão deposicional situada na parte centro-leste do continente sul-americano, cobrindo cerca de 1,6 milhões de quilômetros quadrados, bem como uma pequena parcela do embasamento cristalino paranaense. Deste montante da bacia sedimentar, cerca de 1 milhão de quilômetros quadrados localiza-se em território brasileiro, 400.000  $\text{Km}^2$  na Argentina, 100.000  $\text{Km}^2$  no Paraguai e 100.000  $\text{Km}^2$  no Uruguai, figura 3. A bacia do Paraná é classificada como intracratônica, onde se acumularam, na parte central, mais de 5.000 m de rochas sedimentares e vulcânicas, e seu embasamento é composto por rochas magmáticas e metamórficas, sendo que dois terços de sua área no Brasil apresente cobertura de derrame de lava basáltica.



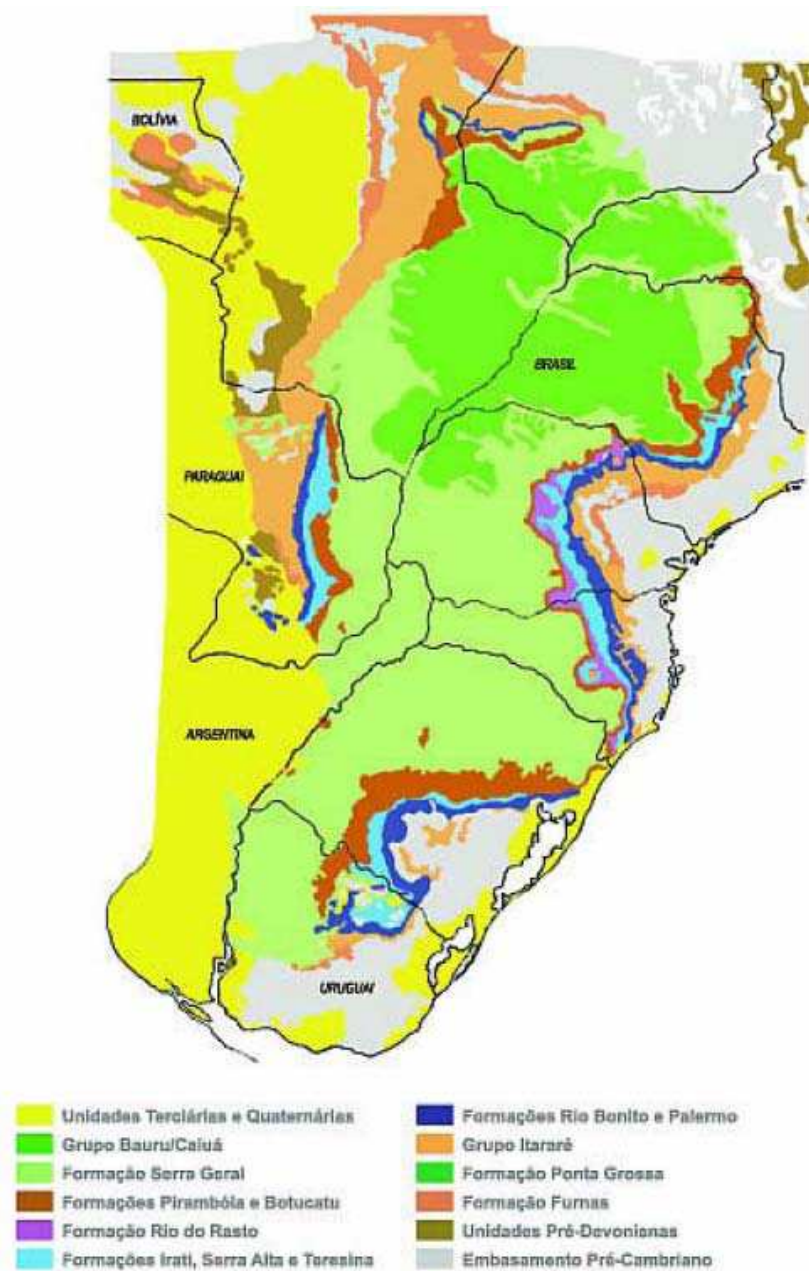
**Figura 3** – Localização da bacia do Paraná no Brasil, modificado de Ribeiro (2001a).

### 3.2.3 Rochas Sedimentares da Bacia do Paraná

A Bacia do Paraná é composta de várias formações vulcanosedimentares, que se enquadram em cinco principais épocas: siluro-ordoviciano, devoniano, permocarbonífero e triássico-jurássico, as quais precedem o evento magmático da seqüência juro-cretácea.

### 3.2.4 Formação Irati

A Formação Irati, de idade neo-permiana aflora nos estados de São Paulo, Paraná, Santa Catarina e Rio Grande do Sul, figura 4.



**Figura 4** – Mapa geológico simplificado da bacia do Paraná modificado de Borguetti (2008)

É a unidade de base do Grupo Passa Dois aflora no Paraná (na região de Sapopema, por exemplo) em faixas contínuas, em zonas de falhamento e de intrusões de grandes *sills* de diabásio. Segundo Petri & Fúlfaro (1983), a Formação Irati caracteriza-se por folhelhos pretos, geralmente betuminosos, de modo que, pela fragmentação, e quando expostos em superfícies não intemperizadas, exalam sempre odor de petróleo. Esses folhelhos são interestratificados com leitos irregulares de dolomitos e calcários, muitas vezes lenticulares. Concreções de sílex de dimensões centimétricas, muitas vezes chamadas de “bonecas” de sílex, foram encontradas. Os “folhelhos petrolíferos”, hoje são reconhecidos como folhelhos pirobotuminosos. Os dolomitos na área de afloramento predominam sobre os calcários. As bonecas são muito características, tanto que, em lugares onde o Irati está decomposto, aparecem em solo normalmente vermelho, por serem resistentes ao intemperismo.

O ambiente de sedimentação dessa formação parece representar ambiente marinho de águas rasas, em bacias ou bacias grandemente confinadas, em clima adequado à precipitação de calcários e condições físico-químicas favoráveis à acumulação de matéria orgânica geradora de pirobotumes (Petri & Fúlfaro, 1983). A Formação Irati foi dividida em dois membros: Taquaral e Assistência. O membro Taquaral tem espessura máxima de 20 m e dificilmente aparece com mais de 10 m. Sua constituição litológica é de argilitos, folhelhos de cor cinza clara a escura e siltitos. O membro Assistência tem espessura em torno de 30 a 50 m e litologia bem variada, com predomínio de dolomitos e calcários parcialmente dolomitizados e de folhelhos pirobotuminosos e piritosos. Sua estratificação é plano-paralela, muito regular, às vezes rítmica, com alternância de carbonatos e folhelhos (Pinese, 2002).

### 3.3 FUNDAMENTOS DE ESPECTROMETRIA GAMA

A espectrometria gama requer a consideração de muitos fatores, como o tamanho e a resolução em energia do detector, a massa e a geometria da amostra, a blindagem da radiação de fundo do laboratório, o tempo de contagem, e a qualidade dos padrões radioativos.

Os principais aspectos da resposta do detector em espectrometria gama são a eficiência, resolução em energia e o tempo morto. A eficiência do detector relata o quão bem o detector absorve os raios gama, a resolução em energia é uma medida da “habilidade” do detector em distinguir dois raios gamas de energia muito próximas e o tempo morto é o tempo requerido pelo espectrômetro para processar a chegada de fóton individual, neste tempo ele não processa a chegada de outros fótons.

A espessura da fonte e sua composição tem um efeito significativo na forma do espectro observado, pois com o aumento de espessura da fonte um contínuo Compton é construído devido a espalhamentos na fonte e o fotopico é então sobreposto pelo fundo Compton, diminuindo a razão pico/compton. A forma do espectro observado depende da quantidade de material atenuante entre a fonte e o detector, da concentração e da geometria da fonte e da função resposta do detector.

A precisão com que o espectrômetro pode medir um raio gama é conhecida como a resolução em energia do detector, usualmente medida como a largura do fotopico a meia altura do seu máximo de amplitude, (FWHM).

As quantidades físicas em física atômica e molecular são definidas expressas em unidades que são adotadas pela Organização Internacional de Padronização (ISO), e são descritas em (ISSO, 1992a) e (ISO 1992b). Referências posteriores são encontradas em recentes publicações da Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP, 1991,1993), e do Comitê Científico de Efeitos de Radiação Atômica das Nações Unidas (UNSCEAR, 1993).

A tabela 7 mostra quantidades e unidades derivadas do SI, e unidades aceitas para ser usadas com SI.

**Tabela 7** – Unidades e quantidades SI e não SI aceitas para ser usadas como SI, modificadas de UNSCEAR (1993)

Quantidade	Simbolo	Unidade	Dimensão	Uso
Atividade	A	Bequerel (Bq)	$s^{-1}$	Radioatividade de objetos
Atividade Especifica	a	Bequerel por Kilograma (Bq/kg)	$kg^{-1}s^{-1}$	Radioatividade de unidade de massa
Concentração de Atividade	$C_A$	Bequerel por metro cúbico (Bq/m <sup>3</sup> )	$m^{-3}s^{-1}$	Radioatividade de gases e líquidos
Atividade Superficial	$a_s$	Bequerel por metro quadrado (Bq/m <sup>2</sup> )	$m^{-2}s^{-1}$	Radioatividade de unidade de área
Exposição	X	Coulomb por Kilogram (C/Kg)	$Kg^{-1}sA$	Efeitos de ionização de raios X e gama no ar
Taxa de Exposição	X	Ampere por kilograma (A/kg)	$A kg^{-1}$	Exposição por unidade de tempo
Dose	D	Gray (Gy)	$m^2s^{-2}$	Dose absorvida
Taxa de Dose	D	Gray por segundo (Gy/s)	$m^2s^{-3}$	Campo de radiação gama
Dose Equivalente	H	Sievert (Sv)	$m^2s^{-2}$	Efeitos biológicos de radiação
Taxa de Dose Equivalente de Fóton	$H_X$	Sievert por segundo (Sv/s)	$m^2s^{-3}$	Dose equivalente por unidade de tempo
Equivalente Dose	$H_T$	Sievert (Sv)	$m^2s^{-2}$	Efeitos biológicos de radiação
Dose Efetiva	E	Sievert (Sv)	$m^2s^{-2}$	Efeitos biológicos de radiação para o homem

### 3.4 ALGUNS MÉTODOS RADIOMÉTRICOS

#### 3.4.1 Espectrometria Gama em Laboratório

A análise laboratorial de  $^{40}\text{K}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{226}\text{Ra}$  em amostras de rocha e solo pode ser usada como complemento em pesquisas de exploração de urânio, mapeamentos radiométricos, e prospecções minerais. Geralmente é usado chumbo para blindar a radiação de fundo (*background*) no laboratório. A análise quantitativa é essencialmente comparativa: a radiação da amostra é comparada com a radiação de um padrão conhecido. A acurácia e a precisão dos resultados dependem de muitos fatores, como citado no item 3.3.

Até o presente, os detectores Semicondutores de Germânio oferecem a melhor resolução disponível para raios gamas com energias desde poucos KeV até 10 MeV. Para obter medidas de espectros precisas, a resolução em energia e a razão sinal-ruído são os parâmetros mais importantes, dessa forma é importante blindar o detector com chumbo para minimizar o *background*. Atenção também deve ser tomada com a taxa de contagens, que não devem ser muito altas para evitar efeitos de *pile-up* que distorcem o espectro.

Para medir intensidades absolutas, é necessária uma calibração absoluta da eficiência de detecção. Isto deve ser feito com fontes de calibração com energia na região de interesse. Uma atenção especial deve ser tomada para a geometria detector-fonte, que deve ser reproduzível para assegurar a reprodutibilidade das medidas.

### 3.4.2 Espectrometria Gama Portátil

Espectrômetros de raios gama portáteis são usados amplamente em estudos de campo. Os procedimentos desta espectrometria dependem do propósito da pesquisa e dos problemas geológicos ou ambientais que estão sendo investigados. O tipo do detector, seu volume, tempos de medidas, e o modo das medidas dependem do tipo de radiação ambiental, tamanho e distribuição das fontes radioativas.

### 3.4.3 Outras Metodologias (Automóvel, Furos de Sondas, Marinha e Aérea)

A espectrometria com automóvel preenche o espaço entre a portátil e a aérea. Tem vantagem em relação ao sistema portátil, pois, cobre uma área maior em um mesmo tempo e custo, e sobre o sistema aéreo, pois tem uma resolução mais rápida e melhorada. Este sistema é mais usado em aplicações ambientais, como por e.x. mapeamento do *fallout* nuclear, busca por fontes radioativas perdidas. Além disso, é restrito a áreas onde é possível o acesso de veículos e essencialmente consiste do sistema aéreo modificado para ser usado em um veículo (IAEA TECDOC, 2003).

A espectrometria gama em furos de sondas é uma das muitas técnicas usadas para fazer medidas em buracos feitos por sondas, para caracterizar propriedades físicas da geologia intersectada. Pesquisas em buracos de sonda tipicamente envolvem medidas de multi-paramêtros usando muitos sensores, para prover dados complementares. Este sistema tipicamente compreende uma sonda, que incorporando unicamente detectores e (sistema passivo) ou que incorpora fontes e detectores (sistema ativo) que são abaixados dentro do buraco. A sonda é presa a um sistema registrador na superfície por um cabo que é usado para transmitir voltagem para a sonda (se ele não possuir

bateria) e os dados para a superfície (a menos que a sonda tenha memória), (IAEA TECDOC, 2003).

A espectrometria gama marinha, obviamente limitada pela atenuação dos raios gama na água, provê uma avaliação do solo oceânico com métodos radiométricos. Os detectores podem ser usados de dois tipos, ou presos a um chip ou mergulhado por um cabo, os dados são passados para a superfície do mar onde um espectrômetro *on-board* analisa os pulsos transmitidos do solo oceânico (IAEA TECDOC, 2003).

A espectrometria gama aérea vem sendo usada há muitos anos, para direta detecção de corpos de minérios e como uma ferramenta de mapeamento litológico. Aplicações ambientais como riscos a saúde associada com radônio em casas, e mapeamento do *fallout* nuclear também vem sendo desenvolvidas. Modernos sistemas de espectrometria gama aérea consistem de montagens com no mínimo dois detectores de 16,4 L, cada detector consiste de 4 cristais de NaI dopados com Tálcio em um contêiner, isolado termicamente, de dimensões 10,2 cm x 10,2 cm x 40,6 cm. O altímetro, temperatura e pressão são usados para corrigir os dados de acordo com a altura do detector acima do solo, uma vez que raios gamas são atenuados pelo ar. Em pesquisas geofísicas aéreas, são feitos geralmente *grids*, e a distância entre as linhas depende da aplicação. Para pesquisas detalhadas usadas em mapeamentos ambientais e geológicos, as linhas estão separadas entre 50 e 400 m, sendo esta distância entre as linhas um compromisso entre a resolução desejada dos dados e o custo da pesquisa. Muitas correções precisam ser feitas em espectrometria gama aérea, são elas: *background*, *stripping*, altura e sensibilidade; para cada uma dessas correções a aproximação tomada para a calibração é empírica (IAEA TECDOC, 2003).

## **4 MATERIAIS E MÉTODOS**

### **4.1 ESPECTROMETRIA GAMA COM (HPGe)**

A espectrometria gama de alta resolução com HPGe é uma técnica analítica, quantitativa não destrutiva, e pode ser usada para aplicações sofisticadas, como por exemplo, a identificação de isótopos poluidores ambientais, identificação de fontes de radiação gama desconhecidas, e estudos detalhados de equilíbrio radioativo e de distribuição de radionuclídeos em amostras de solo e rocha.

#### **4.1.2 Detector**

Neste trabalho foi utilizado um detector de Germânio hiper puro (HPGe), que é um detector semicondutor. Quando a radiação interage com um semicondutor, a energia depositada no cristal, sempre gera a criação de um número igual de elétrons e buracos, independente se é um semicondutor intrínseco ou extrínseco, (tipo-p ou tipo-n), e este número é proporcional à energia depositada no detector. Os detectores de Germânio permanecem em contato térmico com nitrogênio líquido (77 K), estabilizando a temperatura do detector entre 85 e 100 K, isto é feito para reduzir as correntes de fuga que são induzidas termicamente e podem além de prejudicar qualidade das medidas, danificar ou até romper o cristal detector.

O detector usado neste trabalho consiste de um cristal de Germânio hiperpuro, coaxial tipo-p, modelo GEM-M 7080-P-S, ORTEC, que é específico para geometria Béquer Marinelli. O cristal deste modelo tem diâmetro de 69,9 mm e comprimento de 84,2 mm, revestido por uma camada de 1 mm de

alumínio situado a uma distancia de 4 cm do cristal . A faixa de operação de energia vai de 40 KeV – 10 MeV.

#### 4.1.2.1 Resolução em Energia

A resolução em energia é uma medida da habilidade do detector em distinguir duas linhas muito próximas no espectro. A resolução em energia do detector de HPGe é dada pela largura à meia altura em energia, da linha gama considerada, chamada de FWHM. A resolução em energia total de um detector (FWHM) de germânio é normalmente determinada pela combinação de três fatores: flutuação estatística inerente do número de portadores de carga, variação na eficiência de coleta de carga e a contribuição do ruído eletrônico (Knoll, 2000). O domínio destes fatores depende da energia da radiação e do tamanho e qualidade do detector em uso. O FWHM de um pico típico no espectro devido à detecção de um raio gama monoenergético pode ser expresso como;

$$FWHM^2 = FWHM_D^2 + FWHM_X^2 + FWHM_E^2 \quad (18)$$

Onde o primeiro fator, a direita é devido a efeitos de flutuação estatística, e é representado pela equação 19.

$$FWHM_D^2 = 2,35\sqrt{(Fw/E)} \quad (19)$$

Onde, F é o fator de Fano, w é a energia necessária para produzir um par elétron-buraco no detector e (E) é a energia de interesse (Leo, 1994). A contribuição do segundo termo ( $FWHM_X^2$ ), é devida à coleta incompleta de cargas e é mais significativa em detectores de volume grande e campo elétrico baixo. A contribuição do terceiro fator, ( $FWHM_E^2$ ), é menor que 1% para energias menores que 50 KeV e continua decrescendo para energias mais elevadas, assim neste

trabalho este termo foi desprezado (Zulliger, 1969). A resolução total em energia medida para a linha gama de 1,33 MeV do  $^{60}\text{Co}$  foi de 1,93 KeV.

#### **4.1.2.2 Eficiência**

A eficiência de detectores de radiação secundária pode ser dividida em três classes: eficiência absoluta, eficiência intrínseca e eficiência relativa. A eficiência absoluta do fotopico é conhecida como a razão entre o número total de contagens no fotopico e o número total de gamas emitidos da fonte, isto inclui efeitos como o ângulo sólido subtendido pelo detector e a geometria detector fonte. A eficiência absoluta de detecção é função da energia. A eficiência intrínseca é a razão entre o número de pulsos registrados no detector pelo número de quanta de radiação incidente no detector. Por razões históricas a eficiência relativa para detectores coaxiais de Germânio é definida na energia de 1,33 MeV (linha do  $^{60}\text{Co}$ ) em relação ao detector de cintilação de NaI(Tl) de 3" de diâmetro e 3" de comprimento a 25 cm de distância da fonte, sendo a medida feita pelo método descrito em (IEEE-325, 1996). A eficiência relativa do detector utilizado é de 66%.

#### **4.1.2.3 Blindagem do Sistema de Detecção**

Amostras ambientais possuem em geral taxas de decaimento muito baixas, portanto o sistema de detecção deve ser blindado, para que a radiação de fundo não interfira nas medidas. Esta radiação de fundo pode ser proveniente das paredes da sala que contém o detector, dos materiais constituintes de detector, dos equipamentos ou mesmo da blindagem localizada ao redor do detector. O material mais usado em castelo 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 isótopos radioativos traços encontrados no chumbo, e pela radiação cósmica que ao interagir com a blindagem produz radiação secundária, assim como a emissão de raios-x do Pb devido à interação da radiação gama com o material da blindagem. Para dar conta destas contribuições normalmente se usam outros materiais menos densos, justapostos à parede interna dos blocos de chumbo em ordem decrescente de densidade ou número atômico.

Para as medidas com o HPGe, foi utilizada a blindagem da ORTEC, modelo HPLBS1, figura 5.



**Figura 5** – Blindagem da ORTEC modelo HPLBS1.

A blindagem é composta por 10,1 cm de chumbo recoberto internamente por 0,5 cm de estanho e 1,6 cm de cobre para diminuir a incidência no detector dos raios-X gerados no chumbo. Toda a superfície externa é finalizada

com poliuretano e as superfícies internas (chumbo e cobre) são polidas e revestidas com 0,5 mm de verniz de acrílico. A blindagem possui uma cavidade com diâmetro interno de 27,9 cm por 40,6 cm de profundidade que acomoda Béqueres Marinellis de até 4 L.

#### **4.1.2.4 Calibração em Energia**

A calibração em energia de um sistema de detector de germânio consiste em estabelecer uma relação entre o número do canal, ou dos canais, da placa multicanal, *Multichannel Analyzers* (MCA), à energia do raio gama. Esta calibração é feita usando fontes padrões conhecidas, com energias bem definidas dentro da região de interesse. Normalmente essa calibração é realizada com três ou mais linhas gama conhecidas, de energias distribuídas dentro da faixa de energia de interesse, usualmente de 50 KeV até 3000 KeV. Após a calibração em energia do sistema é possível associar ao canal da centróide de um pico a energia correspondente através de tabelas de radionuclídeos e determinar a qual radionuclídeo pertence tal raio gama.

A calibração foi realizada com as fontes certificadas RGK (linha única de gama em 1460,8 KeV), IAEA-327, e IAEA-385 (com linhas gama na região de 60 até 2000 KeV).

#### **4.1.3 Eletrônica Nuclear**

Em qualquer medida de espectrometria, o detector absorve a energia da partícula ou radiação incidente e a transforma em um pulso de corrente ou tensão. Este pulso é, na maioria das vezes, amplificado e formatado. Nesse

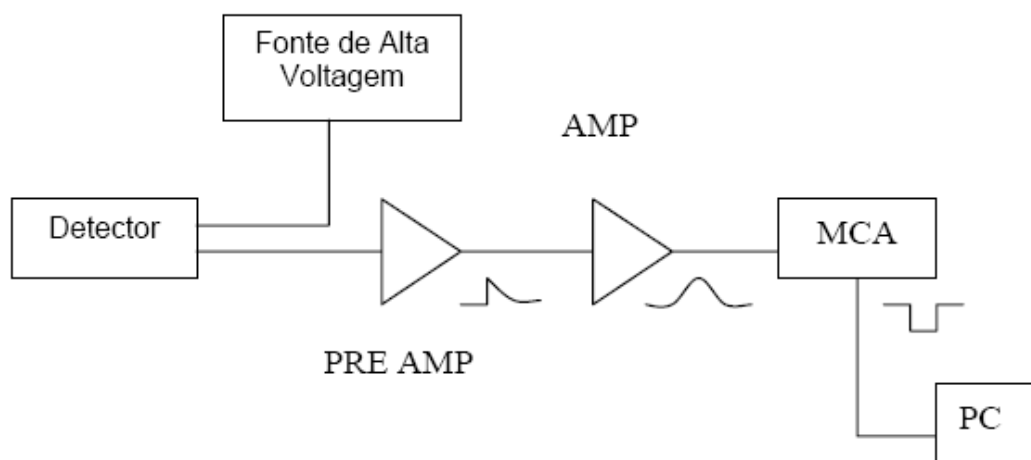
processo são necessários módulos eletrônicos para aquisição de dados, neste trabalho foram utilizados os seguintes módulos:

- **Fonte de alta tensão**, ORTEC, modelo 659- sua função é alimentar o detector, com tensão de 0 - 5000 V, (aumenta a zona sensível do cristal semicondutor detector, *depletion zone*), neste trabalho utilizamos a tensão em 3000 V.
- **Pré amplificador**- a função básica do pré-amplificador é amplificar os sinais fracos vindos do detector e ao mesmo tempo adicionar o mínimo possível de ruído (para não utilizar cabos e gerar ruído o mesmo fica acoplado ao detector). No caso deste detector semicondutor de radiação é utilizado um pré-amplificador do tipo sensível à carga, que gera um sinal analógico.
- **Amplificador Linear**, ORTEC, modelo 575- tem a função de amplificar e formatar os pulsos medidos provenientes do sinal de carga coletado no préamplificador. Um fator importante a ser considerado na escolha do amplificador é o tempo de formação de pulso. Para detectores HPGe coaxiais, a constante de tempo para otimizar a resolução esta entre 2-4  $\mu$  s. Entretanto se as contagens são maiores que 200 s<sup>-1</sup>, constantes de tempo de 2  $\mu$  s ou maiores contribuem para a produção de *pile up* e para as incertezas no cálculo das áreas dos picos, devido às distorções na sua forma. O tempo de formação do pico do amplificador utilizado foi de 0,5  $\mu$  s. Este amplificador possui dois estágios de ajuste de ganho, um grosso e um fino, que juntos fornecem uma faixa de ganho de 5 a 750 vezes. Pode-se ainda escolher a polaridade do pulso de entrada vindo do pré-amplificador, para positiva ou negativa, e também selecionar a forma de saída do pulso para unipolar ou bipolar. O amplificador foi ajustado com um fator de ganho fino de 1,394 e um fator de ganho grosso de 20, com o

circuito de entrada analisando pulsos de entrada positivos e resultando em pulsos de saída unipolares.

- **Placa multicanal (MCA)**- consiste de um sofisticado dispositivo que separa os pulsos adquiridos (uni ou bipolares) de acordo com sua altura e grava o número de contagens em cada canal em uma memória. As contagens em cada canal podem então ser visualizadas em uma tela de computador como um espectro de altura de pulsos. Além disso, a MCA digitaliza os pulsos adquiridos. Neste trabalho foi utilizada um placa multicanal modelo EG&G ORTEC *Trump-8K/2K (multichannel buffer-MCB)*, acoplada a um computador PC ajustado para 8192 canais, com software MAESTRO-32.

A figura 6 a seguir mostra um diagrama simples do sistema de detecção.

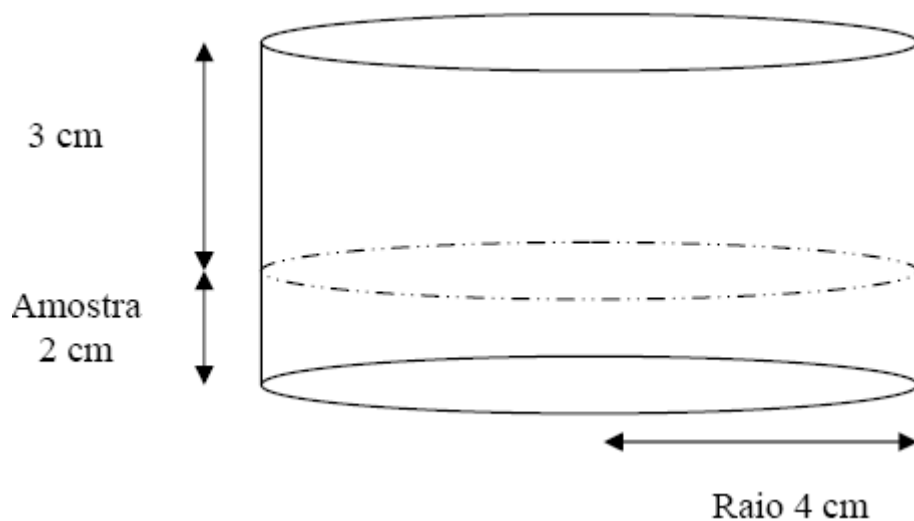


**Figura 6** – Diagrama para os componentes da eletrônica utilizada.

As determinações das áreas dos picos foram feitas através do PC e do software MAESTRO-32, as análises para a determinação das atividades foram realizadas utilizando o software Excel e os gráficos utilizando o software Origin 7,0.

#### 4.1.4 A Geometria Usada

A geometria da amostra usada neste trabalho foi um béquer plástico com 4 cm de raio e 5 cm de altura, sendo que a amostra foi colocada no Becker até a altura de 2 cm, como mostra a figura 7. O béquer foi colocado justaposto à parte superior do detector.

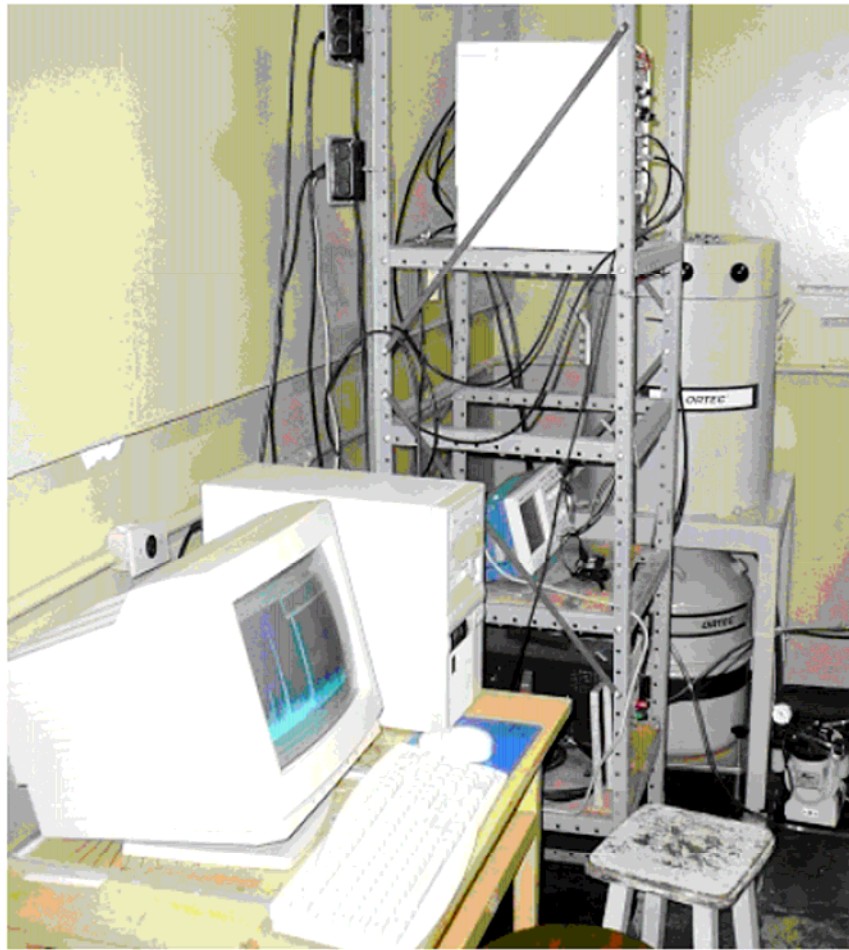


**Figura 7** – Geometria da amostra utilizada nas medidas

Esta geometria acomoda um volume de aproximadamente 10 mL de amostra (entre 150 e 250 g), uma quantia bastante pequena quando comparada a da geometria Béquer Marinelli que acomoda 1L ou aproximadamente 1 Kg dependendo da densidade da amostra. Esta geometria foi escolhida, pois as amostras analisadas, rochas, são duras e precisam ser britadas manualmente e passadas em uma peneira de 4 mm para serem colocadas na geometria, o que tornou a geometria Béquer Marinelli inviável. Além disso, a quantidade necessária de amostra de padrões certificados para essa geometria é bem menor do que para a geometria Béquer Marinelli.

#### 4.1.5 Configuração do Sistema de Detecção

Na figura 8 podemos ver todo o sistema de aquisição de dados, incluindo a geometria da blindagem, o detector, e a eletrônica nuclear utilizada.



**Figura 8** – Configuração do sistema de detecção

#### 4.2 AMOSTRAGEM

As amostras de rocha sedimentar da Formação Irati, estudadas neste trabalho, foram coletadas com ajuda de uma pá de mão, uma marreta, trena, GPS e um formão, no dia 04/09/06, em um paredão, figura 9, de uma mina

de calcário a céu aberto abandonada, a cerca de 25 km da cidade de Sapopema, Norte do Pr, ao lado do cemitério do vilarejo chamado Vida Nova, cuja Zona UTM é 22K, X=0549556m, Y=7363878m, Z=618m (Sistema referencial de localização terrestre baseado em coordenadas métricas definidas para cada uma das 60 zonas UTM, múltiplas de 6 graus de longitude, na Projeção Universal Transversal de Mercator e cujos eixos cartesianos de origem são o Equador, para coordenadas N (norte) e o meridiano central de cada zona, para coordenadas E (leste), devendo ainda ser indicada a zona UTM da projeção).

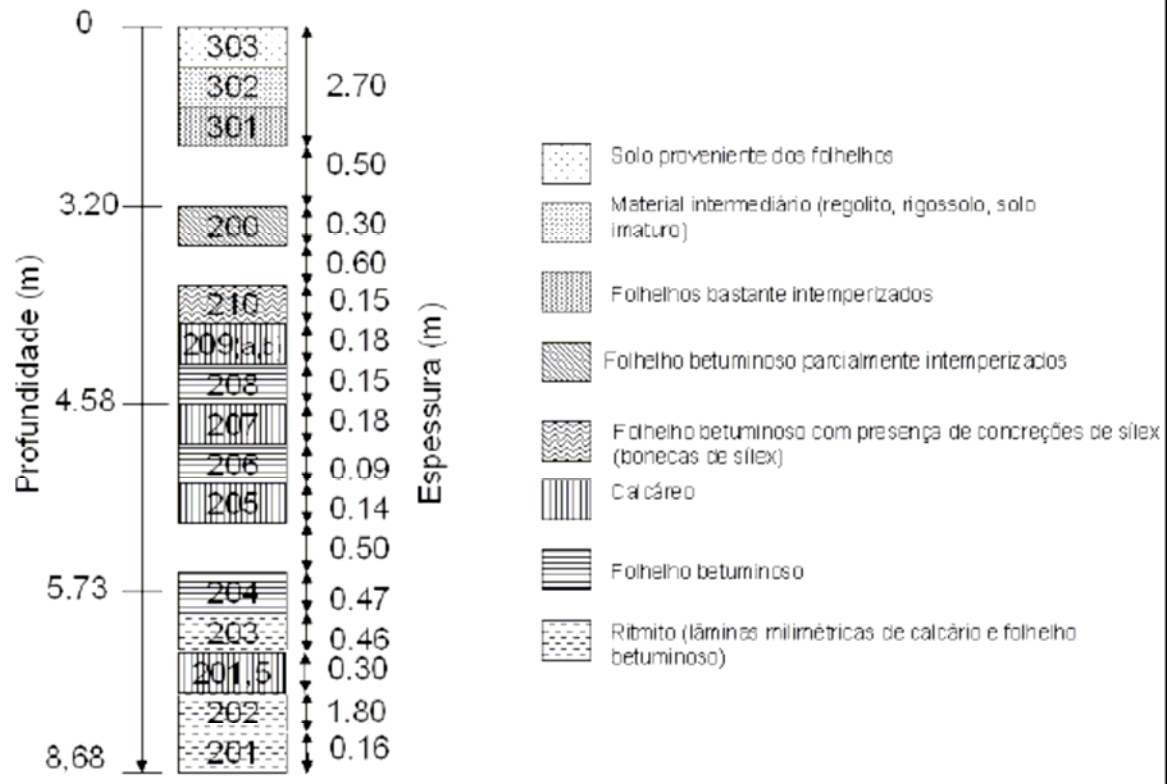
Foram coletadas três grupos de amostras, totalizando 24 amostras em um perfil de aproximadamente 8,50 m de profundidade com cerca de 1 Kg cada. Destas, 13 amostras são da base ao topo do paredão, com altura de aproximadamente 5,50 m, em uma única secção transversal. As amostras foram colocadas em sacos plásticos e rotuladas. Foi tomado cuidado para não utilizar amostras superficiais, expostas ao intemperismo. Em uma das amostras mais próxima da base (amostra 202) foram coletadas 8 alíquotas da mesma para um estudo de variabilidade. Acima do paredão foram coletadas três amostras de rigolitos (301, 302 e 303) em estágios seqüenciais de intemperização.



**Figura 9** – Paredão de mina abandonada onde foi realizada a amostragem.

#### **4.2.1 Descrição das Amostras**

Litológicamente a coluna amostrada da Formação Irati é representada por uma sucessão de calcários, folhelhos betuminosos e Ritmitos, (lâminas milimétricas de calcário e folhelho betuminoso). Estas amostras, mais os rigolitos (amostras 301, 302 e 303), estão dispostas no perfil como mostra a figura 10.



**Figura 10** – Distribuição das amostras no paredão.

#### 4.2.2 Origem e importância das amostras

A Formação Irati (Bacia do Paraná) é uma importante fonte de Calcário Dolomítico. Portanto, é relevante fazer um estudo das quantidades radiométricas e dosimétricas, uma vez que essas rochas têm diversas aplicações, e através deste buscar um entendimento do comportamento dos radionuclídeos nestas rochas. Assim, será gerado um banco de dados referentes a essa formação que pode ser útil para outras investigações ambientais ou geofísicas. O uso de rochas calcárias depende da composição química e ou suas características físicas. Podem ser usadas para a indústria do cimento e indústria da cal. Os cales, por sua vez, podem ser usados em varias áreas como; construção civil, indústria química, indústria cerâmica, indústria do vidro, plásticos, siderúrgica, tintas e

vernizes, perfumaria, saneamento, explosivos, indústria petrolífera, indústria do papel e metalurgia entre outras. Os calcários “in natura” podem ser usados como blocos ornamentais (estatuários, revestimentos externos e internos, lajes, entre outras aplicações). O calcário moído é usado como corretivo de solo para a agricultura.

#### **4.2.3 Preparação das Amostras**

As vinte e quatro amostras, de cerca de 1 kg, coletadas em campo e guardadas em sacos plásticos, foram secas em bacias de plástico ao sol por aproximadamente 24 horas. Cerca de 500 g de cada amostra foi britada manualmente com ajuda de marreta e chapa metálica, e passadas em uma peneira de 4 mm. Esta amostra já britada foi quarteada, (processo de homogeneização da amostra que consiste em dividir alíquotas da amostra, neste caso a britada, em quatro partes iguais e descartar duas e repetir este processo até que só reste a quantidade de amostra que vai ser analisada), e cerca de 100 ml, entre 150 e 250g, foi colocada em béqueres plásticos cilíndricos. Estes foram selados para os radionuclídeos atingirem o equilíbrio secular. Só após 40 dias foram realizadas as medidas por espectrometria gama.

#### **4.2.4 Variabilidade e Reprodutibilidade**

Em medidas ambientais com HPGe é importante fazer uma avaliação da amostragem e do sistema de medidas. A primeira pode ser feita realizando-se um estudo da variabilidade de uma dada amostra, ou seja dividimos um amostra em várias sub-amostras e fazemos as medidas com o objetivo de verificar se realmente trata-se de uma mesma amostra. Isto fica evidente se o

resultado obtido é estatisticamente o mesmo para todas as sub-amostras, dentro dos desvios experimentais. Utilizando-se a distribuição de Student, duas grandezas são consideradas iguais se estão dentro do intervalo de um dado nível confiança equação 20.

$$\bar{x} - t_{N-1} \frac{s}{\sqrt{N}} < \mu < \bar{x} + t_{N-1} \frac{s}{\sqrt{N}} \quad (20)$$

Onde  $\bar{x}$  é a média amostral,  $\mu$  é a média populacional,  $s$  é o desvio padrão amostral e  $N$  é o número de elementos. A tabela com os parâmetros da distribuição de Student ( $t_v$ ) está no anexo 2.

Já para a reprodutibilidade escolhemos algumas amostras e realizamos várias medidas aleatoriamente, com o objetivo de verificar se o sistema de detecção reproduz o mesmo resultado uma vez que trata-se da mesma amostra. Neste trabalho realizamos o estudo da variabilidade para a amostra 206 e 207 e o estudo da reprodutibilidade para as amostras 206, 202(a), 202(g) e 202(j).

### 4.3 ANÁLISE

Neste capítulo serão definidas as principais grandezas e equações usadas no trabalho, como o cálculo da atividade, os limites mínimos de detecção, o cálculo da dose e o procedimento da análise experimental.

### 4.3.1 Expressão para a Estimativa da Atividade

Geralmente qualquer gama emitido por um radionuclídeo filho das séries do  $^{238}\text{U}$  e  $^{232}\text{Th}$  pode ser usado para estimar a atividade do núcleo pai, isto é possível se a série está em equilíbrio secular. A atividade é então derivada da taxa de contagens como mostra a equação abaixo.

$$A(^A X) = \frac{C(E)}{P_\gamma(E) \cdot \epsilon(E) \cdot m \cdot t} \quad (21)$$

Onde,  $A(^A X)$  é a atividade do isótopo  $^A X$ , na amostra de massa  $m$ ;  $C(E)$  é o número de contagens líquidas obtido na região de interesse (ROI) com energia  $(E)$  do raio gama emitido por  $^A X$ , e  $P_\gamma(E)$  e  $\epsilon(E)$  são a probabilidade de emissão e a eficiência de detecção para o raio gama com energia  $(E)$ , respectivamente.

A estimativa da atividade para o  $^{232}\text{Th}$  foi obtida através das subséries do  $^{228}\text{Ra}$  e do  $^{228}\text{Th}$ , cujas meias vidas são respectivamente 5,75 anos e 1,9 anos. Portanto, caso haja discordância significativa entre essas duas determinações da atividade para o tório, podemos afirmar que a série está em desequilíbrio e que este desequilíbrio é recente com no máximo 57,5 anos. A subsérie do  $^{228}\text{Ra}$  foi determinada através do  $^{228}\text{Ac}$  (linhas gama 911,2 e 968,9 KeV) e a sub-série do  $^{228}\text{Th}$  através do  $^{208}\text{Tl}$  (linhas gama 583,2 e 860,6 KeV) e  $^{212}\text{Pb}$  (linha gama 238,6 KeV). A estimativa para atividade de cada sub-série foi calculada da média ponderada pelos desvios dos resultados obtidos pela equação 21. Para os gamas emitidos pelos radionuclídeos. A estimativa para a atividade do  $^{232}\text{Th}$  foi calculada pela média ponderada pelos desvios dos resultados obtidos para as sub-séries.

A atividade do  $^{40}\text{K}$  foi estimada através da equação 21, utilizando sua única linha gama em 1460,8 KeV. Esta linha é sobreposta pela linha em 1459,2 keV do  $^{228}\text{Ac}$  da série do tório, porém como a correção da contribuição do

tório nessa linha é menor que os desvios da medida, neste trabalho não foi preciso fazer essa correção.

Foram realizadas três estimativas para a atividade do  $^{238}\text{U}$ , através da sub-série do  $^{226}\text{Ra}$ , da linha gama de 92 KeV do  $^{234}\text{Th}$  e da linha de 185 KeV do  $^{235}\text{U}$  (esta linha gama pertence à série do  $^{235}\text{U}$  e portanto é necessário levar em conta a razão isotópica  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  nesta estimativa para o  $^{238}\text{U}$ ). As meias vidas do  $^{234}\text{Th}$  e  $^{226}\text{Ra}$  são respectivamente 24,1 dias e 1602 anos, portanto caso haja discordância significativa entre essas duas determinações da atividade para o urânio, podemos afirmar que a série está em desequilíbrio e que este desequilíbrio é antigo com no máximo 16.020 anos. A sub-série do  $^{226}\text{Ra}$  foi determinada através do  $^{214}\text{Pb}$  (linhas gamas 295,2 e 351,9 KeV) e  $^{214}\text{Bi}$  (linhas gama 609,3; 1120,3 e 1764,5 KeV). Na estimativa para o  $^{238}\text{U}$  feita através do  $^{235}\text{U}$  (linha 185,7 KeV), assumindo a razão isotópica  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  constante,  $21,701 \pm 0,032$  (Debertin and Helmer, 1988), há uma linha gama de 186,2 KeV do  $^{226}\text{Ra}$  sobreposta. Esta sobreposição pode ser resolvida, e a atividade do  $^{238}\text{U}$  pode ser calculada reescrevendo a equação 21.

$$A(^{238}\text{U}) = \frac{C(185,7) - (A(^{226}\text{Ra})P_{\gamma}(186,2)\varepsilon(185,7)m.t)}{P_{\gamma}(185,7)\varepsilon(185,7)mt} \cdot 21,7 \quad (22)$$

Onde  $A(^{226}\text{Ra})$ , é a atividade do radio,  $C(185,7)$  é a contagem para o ROI utilizado na energia 185,7 KeV,  $\varepsilon(185,7)$  é a eficiência absoluta para esse ROI e  $P_{\gamma}(186,2)$  e  $P_{\gamma}(185,7)$  são as probabilidades de emissão.

A estimativa para o  $^{238}\text{U}$  foi feita através da linha 92 KeV do  $^{234}\text{Th}$ , onde também há uma sobreposição devida ao  $^{235}\text{U}$ . Esta sobreposição pode ser resolvida assumindo a razão isotópica  $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$  constante, e a atividade do  $^{238}\text{U}$  pode ser calculada reescrevendo a equação 21.

$$A(^{238}\text{U}) = \frac{C(92)}{m.t.\varepsilon(92) \left( P_{\gamma}(^{238}\text{Useries} - 92) + \frac{P_{\gamma}(^{235}\text{Useries} - 92)}{21,7} \right)} \quad (23)$$

A estimativa para a atividade da sub-série do  $^{226}\text{Ra}$  foi calculada com a média ponderada pelos desvios dos resultados obtidos pela equação 21, para os gamas emitidos pelos respectivos radionuclídeos. A estimativa para a atividade do  $^{238}\text{U}$  foi calculada através da média ponderada pelos desvios dos resultados obtidos pelas três estimativas.

As atividades estimadas finais para o  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{40}\text{K}$  e  $^{238}\text{U}$  foram calculadas pela média ponderada pelos desvios, a partir das linhas gamas pertencentes a cada sub-série equação 24.

$$\bar{A} = \frac{\left( \frac{A_1}{\sigma_1^2} + \frac{A_2}{\sigma_2^2} + \frac{A_3}{\sigma_3^2} + \dots + \frac{A_n}{\sigma_n^2} \right)}{\left( \frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2} + \frac{1}{\sigma_3^2} + \dots + \frac{1}{\sigma_n^2} \right)} \quad (24)$$

Onde  $A_1, A_2, \dots, A_n$  são as atividades calculadas para cada radionuclídeo da sub-série (para  $n$  radionuclídeos) e  $\sigma$  seus respectivos desvios (desvio padrão da média). A estimativa da atividade para cada radionuclídeo é acompanhada de desvios, portanto é necessário propagar os desvios no cálculo da atividade média ponderada como mostra a equação 26.

$$\sigma_{\bar{A}} = \frac{1}{\left( \frac{1}{\sigma_1^2} + \frac{1}{\sigma_2^2} + \frac{1}{\sigma_3^2} + \dots + \frac{1}{\sigma_n^2} \right)} \quad (25)$$

#### 4.3.2 Teste de Qui-Quadrado ( $\chi^2$ )

O teste de Qui-Quadrado é um método estatístico que possibilita, neste caso, verificar se a média ponderada da atividade estimada, (do  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$

e  $^{226}\text{Ra}$ ), é representativa dos valores individuais estimados pelas linhas gamas. Este teste é definido por Green (1978) como apresentado na equação 26.

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^n \frac{(x_i - \bar{x})^2}{\sigma_i^2} \quad (26)$$

Onde, neste caso,  $\bar{x}$  e  $x_i$  são as estimativas da média ponderada para a atividade de um dado radionuclídeo, e para uma dada linha gama respectivamente;  $\sigma_i$  é o desvio padrão associado à estimativa  $x_i$ ;  $n$  é o número de estimativas. Quando  $\chi^2 = 0$  a atividade média é representativa dos valores individuais, quando  $\chi^2 > 0$ , isto não se dá. Quanto maior for  $\chi^2$ , menos representativa é a média dos valores individuais. Se o valor calculado de  $\chi^2$  for maior que os valores críticos, de acordo com um certo nível de significância para  $n-1$  graus de liberdade, podemos concluir que a média calculada não é representativa dos valores individuais e podemos descartá-la no nível de significância correspondente (Barros Neto, 2001). A Tabela com os valores críticos para a distribuição de  $\chi^2$  está apresentada no anexo I.

#### 4.3.3 Limite Mínimo de Detecção (LLD)

Para a maioria das aplicações de medidas de baixo nível de radiação é necessário definir um limite de detecção para cada emissão em estudo. O limite mínimo de detecção expressa a capacidade de detecção do sistema de medidas sob certas condições. Uma estimativa para a quantidade mínima de atividade específica de um dado radionuclídeo emissor gama que pode ser detectada, em um certo tempo de medida, pode ser calculada por diferentes expressões. O Limite Mínimo de Detecção (LLD), equação 27 é definido para o

intervalo de 95 % de confiança de detectar a presença “verdadeira” de atividade (Curie, 1968, IAEA, 1989).

$$LLD = \frac{4,66\sigma_b}{\varepsilon P_\gamma mt} \quad (27)$$

Onde  $\sigma_b$  é o erro padrão estimado para a taxa de contagem líquida do branco. A equação acima nos dá uma concentração mínima detectável e é influenciada por fatores como; eficiência de contagens, quantidade de amostra e o tempo de contagem do branco. O branco ideal consistiria em uma amostra igual às outras (geometria e matriz), mas sem emissores de radiação. Porém como um branco ideal não existe, foi utilizado nas medidas de fundo um béquer vazio, o que devido à ausência da auto-atenuação na matriz (béquer vazio), gera um LLD um pouco superestimado.

#### 4.3.4 Cálculo das concentrações

O cálculo das concentrações dos radionuclídeos é realizado utilizando as atividades obtidas e a tabela 8.

**Tabela 8** – Conversão da atividade específica em rochas para a concentração de radionuclídeos modificado de IAEA TECDOC (2003).

Concentração do radionuclídeo	Atividade (Bk/Kg)	Radionuclídeo
1% K	313	<sup>40</sup> K
1 ppm eU	12,35	<sup>238</sup> U ou <sup>226</sup> Ra
1ppm de eTh	4,06	<sup>232</sup> Th

Onde as concentrações são dadas em: % K (porcentagem de potássio), ppm eU (partes por milhão de equivalente urânio) e ppm eTh (partes por milhão de equivalente tório).

#### 4.3.5 Cálculo da taxa de dose

Dose (D) é definida como a energia transferida pela radiação para uma unidade de massa irradiada, sua unidade é o Gray (Gy),  $1 \text{ Gy} = 1 \text{ J/Kg}$ . Já a taxa de dose  $D'$ , cuja unidade é o gray por segundo (Gy/s), é a energia transferida pela radiação para uma unidade de massa irradiada por segundo, usualmente é expressa em nGy/h.

A radiação terrestre resulta dos radionuclídeos primordiais nas rochas que foram sintetizados durante a criação da terra, as fontes mais significantes são o potássio, urânio e tório e seus filhos (ver tabela 2 e tabela 3).

Na tabela 9 a taxa de exposição e a taxa de dose são calculadas teoricamente a 1m acima de um plano infinito e com concentração homogênea de radionuclídeos por unidade de solo, assumindo que as séries do tório e do urânio estão em equilíbrio.

**Tabela 9** – Taxa de exposição e taxa de dose teórica para raios gama modificado de IAEA TECDOC( 2003).

Concentração do radionuclídeo	Taxa de Exposição ( $\mu\text{R/h}$ )	Taxa de Dose (nGy/h)
1% K	1.505	13.078
1 ppm U	0.653	5.675
1 ppm Th	0.287	2.494

O cálculo para a taxa de dose é feito utilizando as atividades calculadas e as tabelas 8 e 9.

#### **4.3.6 Calibração em Eficiência**

A calibração em energia torna possível a identificação dos radionuclídeos presentes na amostra, com uma certa resolução que depende do tipo de detector. Porém, só com esta calibração não é possível quantificar, pois apesar de conhecermos as áreas líquidas dos fotopicos (contagens líquidas) de interesse, equação 21, não conhecemos a eficiência de detecção para este fotopico. Existem métodos teóricos e semi-empíricos de calibração em eficiência sendo usados, porém é recomendado determinar a calibração em eficiência experimentalmente, embora para amostras ambientais isto seja mais trabalhoso e demorado. Basicamente, para quantificar a atividade específica de cada radionuclídeo devemos conhecer a equação da calibração em eficiência que relaciona a área do fotopico desejado com atividade deste radionuclídeo em uma amostra certificada. De maneira geral, utiliza-se uma amostra certificada misturada às amostras que vão ser analisadas, com as mesmas condições geométricas e com composição química e densidade semelhantes e imitando o máximo possível a matriz da amostra analisada, pois estes fatores influenciam a auto-atenuação e conseqüentemente a eficiência de detecção.

Neste trabalho, como foram analisadas rochas sedimentares, compostas por carbonatos (dolomita ou carbonato de cálcio e magnésio ( $\text{CaCO}_3 \cdot \text{Mg CO}_3$ )) e silicatos ( $\text{SiO}_4$ ) optou-se por utilizar a amostra certificada de sedimento marinho IAEA-385, com densidade  $2,56 \text{ g/cm}^3$ , composta basicamente por silicatos, uma vez que silicatos e carbonatos tem número atômico médio muito parecidos, e também ao fato de que para a geometria utilizada, como apresenta Rodrigo, (2007), mesmo para uma grande variação de densidade de  $0,5$  a  $2,2 \text{ g/cm}^3$ , devida a diferentes amostras (arenitos, siltitos, riolitos e basaltos, rigolito,

solo, sílica pura, carbonato de cálcio puro), não há variação significativa na autoatenuação. Assim para a energia do 92 KeV utilizada para fazer a estimativa para a atividade do  $^{238}\text{U}$ , não há influência importante da auto-atenuação, uma vez que as amostras medidas e o padrão certificado escolhido tem matrizes semelhantes. As atividades dos radionuclídeos da amostra certificada utilizados para a calibração estão descritos na tabela 10.

**Tabela 10** – Atividade dos radionuclídeos presentes na amostra certificada IAEA-385

IAEA-385		
Radionuclídeo	Valor recomendado (Bq.Kg <sup>-1</sup> )	Intervalo de confiança de 95%
$^{40}\text{K}$	611	603 - 625
$^{226}\text{Ra}$	22,7	21,8 – 24,0
$^{232}\text{Th}$	33,8	32,6 – 34,5
$^{235}\text{U}$	1,36	1,24 – 1,51
$^{238}\text{U}$	29,4	28,0 – 30,5

Para as atividades dos radionuclídeos de cada sub-série foi utilizada a atividade do pai da sub-série, assumindo que estas estão em equilíbrio secular.

### 4.3.7 Validação da Metodologia

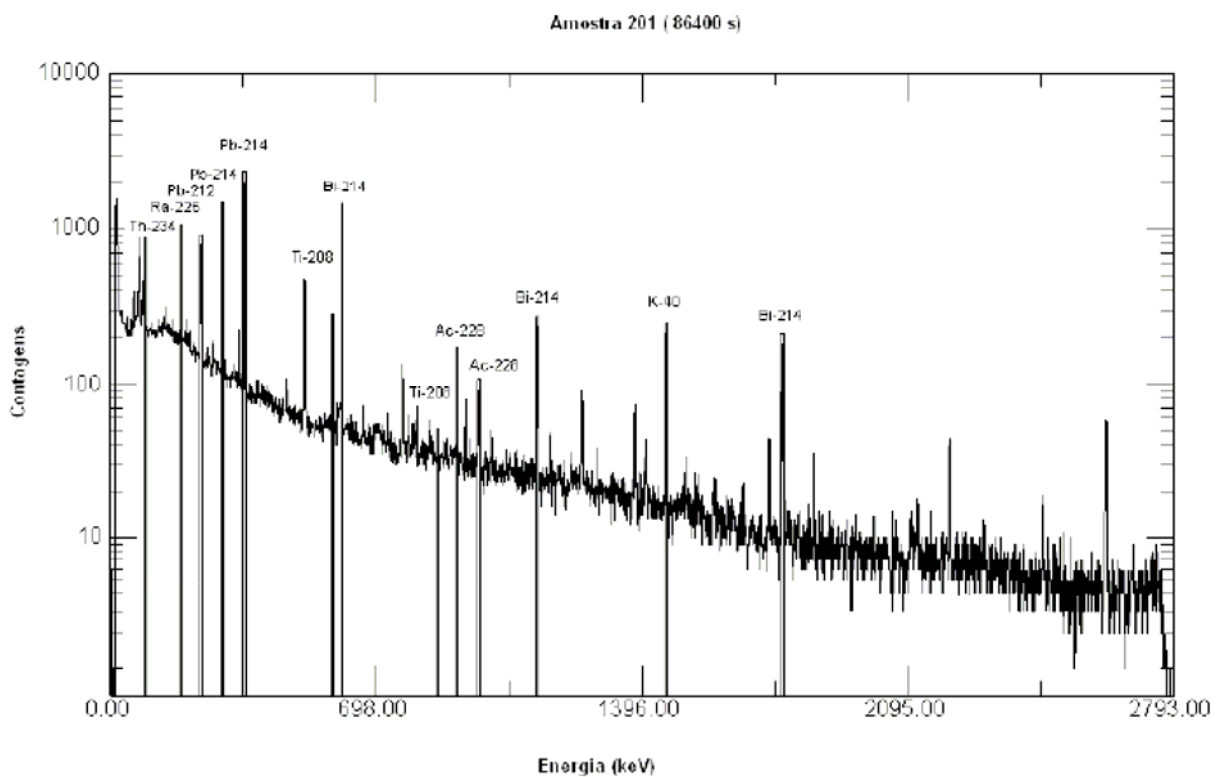
A validação da metodologia consiste basicamente em verificar o quão boa é a curva de calibração. Para isto determinou-se as atividades da amostra de solo certificada IAEA-327, que foram comparadas com seus valores de atividades certificadas, tabela 11.

**Tabela 11** – Atividade dos radionuclídeos presentes na amostra certificada IAEA-327

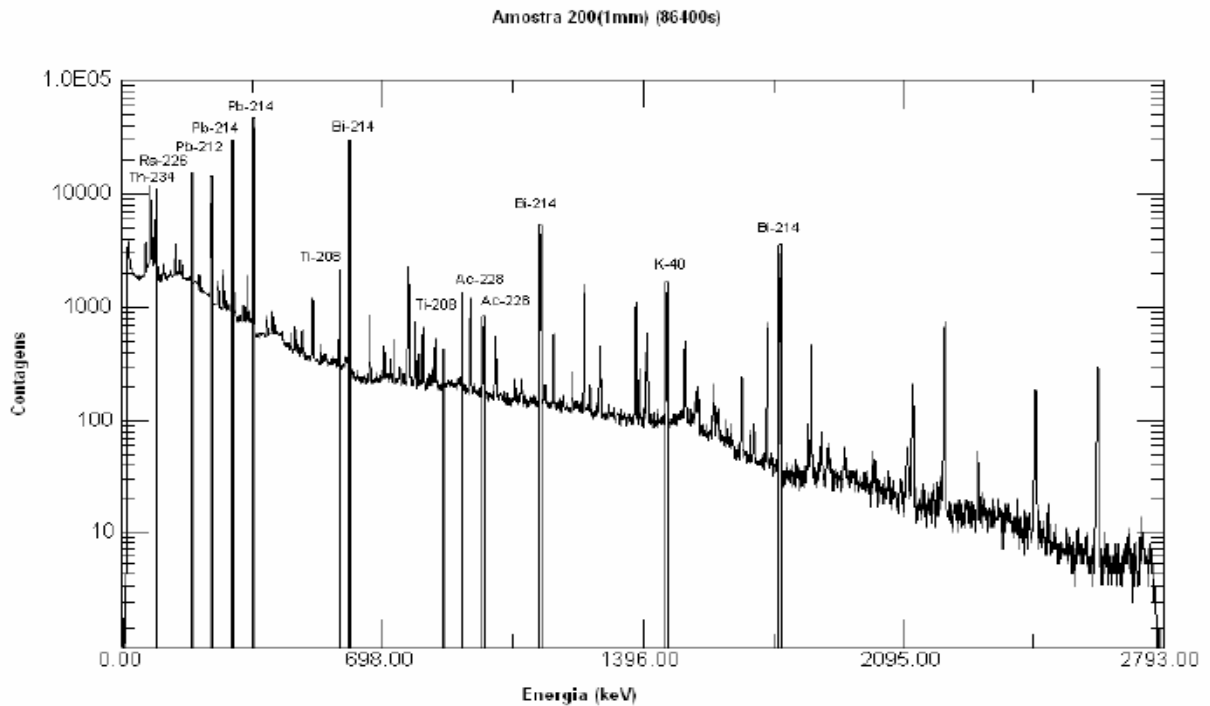
IAEA-327		
Radionuclídeo	Valor recomendado (Bq.Kg <sup>-1</sup> )	Intervalo de confiança de 95%
<sup>40</sup> K	621	612 - 630
<sup>226</sup> Ra	34,1	32,7 – 35,5
<sup>232</sup> Th	38,7	37,2 – 40,2
<sup>235</sup> U	1,43	1,22 – 1,64
<sup>238</sup> U	32,8	31,4 – 34,2

## 5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

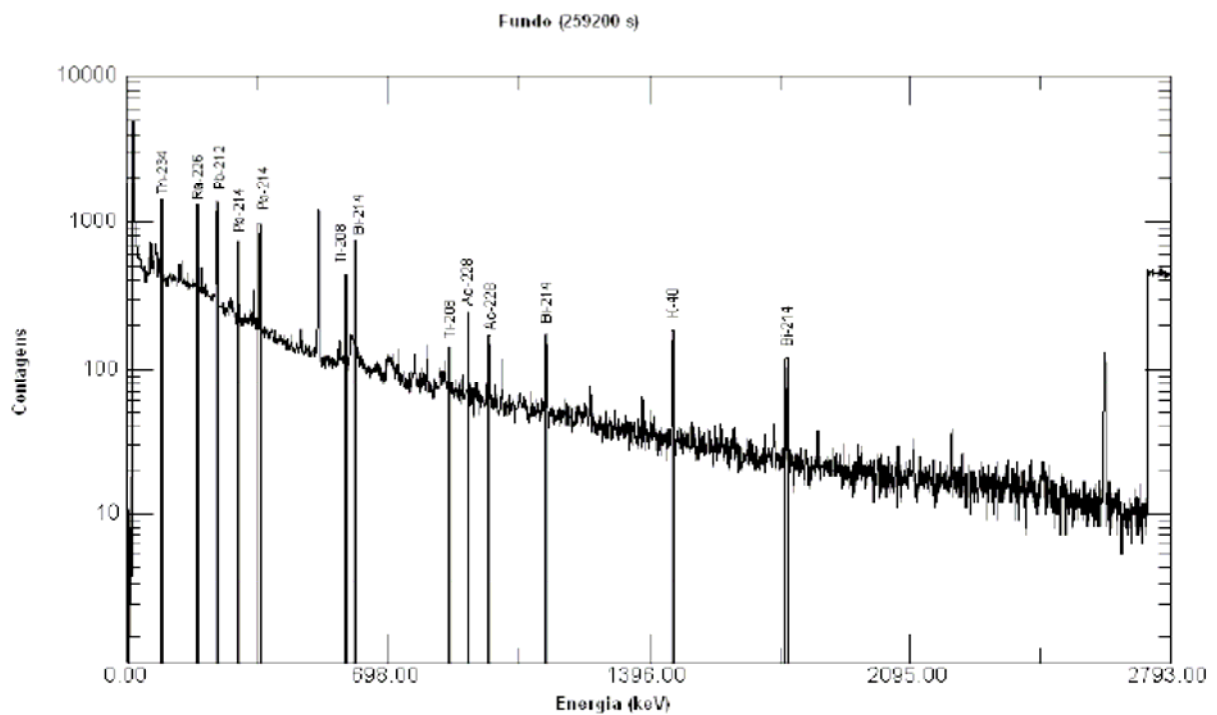
Neste capítulo serão apresentados os resultados e discussões de todas as análises realizadas, incluindo desde a calibração em eficiência até as estimativas das doses absorvidas. Nas figuras 11, 12 e 13 a seguir são mostrados exemplos de espectros de algumas amostras, onde foram marcadas todas as linhas gamas que foram utilizadas nos cálculos das atividades.



**Figura 11** – Espectro gama da amostra 201 para um tempo de contagem de 86400 s.



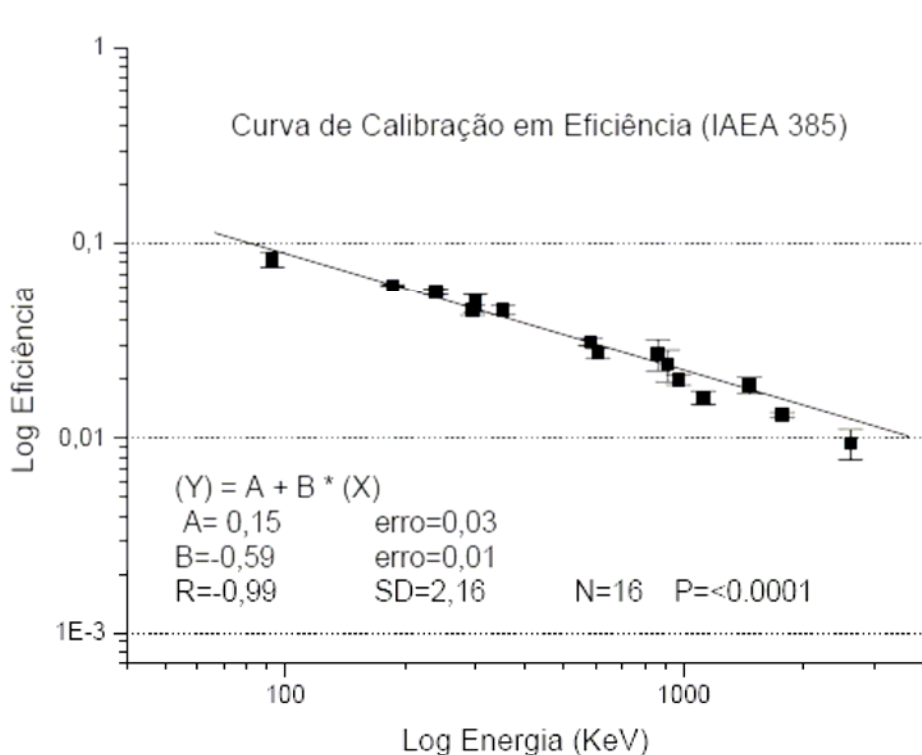
**Figura 12** – Espectro gama da amostra 200(1mm) para um tempo de contagem de 86400 s.



**Figura 13** – Espectro gama do Fundo (Béquer vazio) para um tempo de contagem de 259200 s.

## 5.1 CURVA DE EFICIÊNCIA

Neste trabalho foi utilizada à amostra certificada IAEA-385 e a curva obtida está mostrada na figura a seguir.

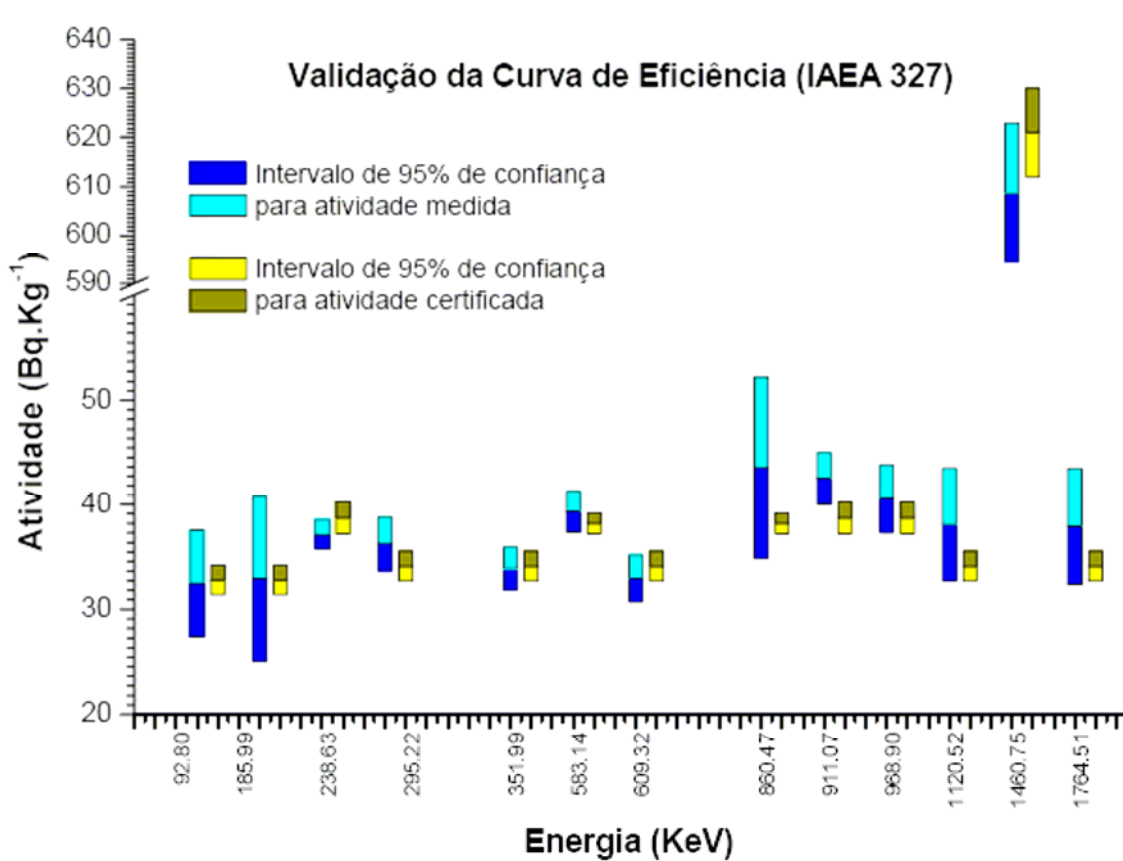


**Figura 14** – Curva de eficiência utilizando a amostra certificada de sedimento marinho IAEA-385, referente aos radionuclídeos das séries do  $^{232}\text{Th}$  e  $^{238}\text{U}$ , e linha do  $^{40}\text{K}$ .

## 5.2 VALIDAÇÃO DA METODOLOGIA

Para verificar a qualidade da curva de calibração em eficiência obtida foi realizado o procedimento chamado de validação da metodologia, que consiste em utilizar uma outra amostra padrão, (na mesma geometria), para

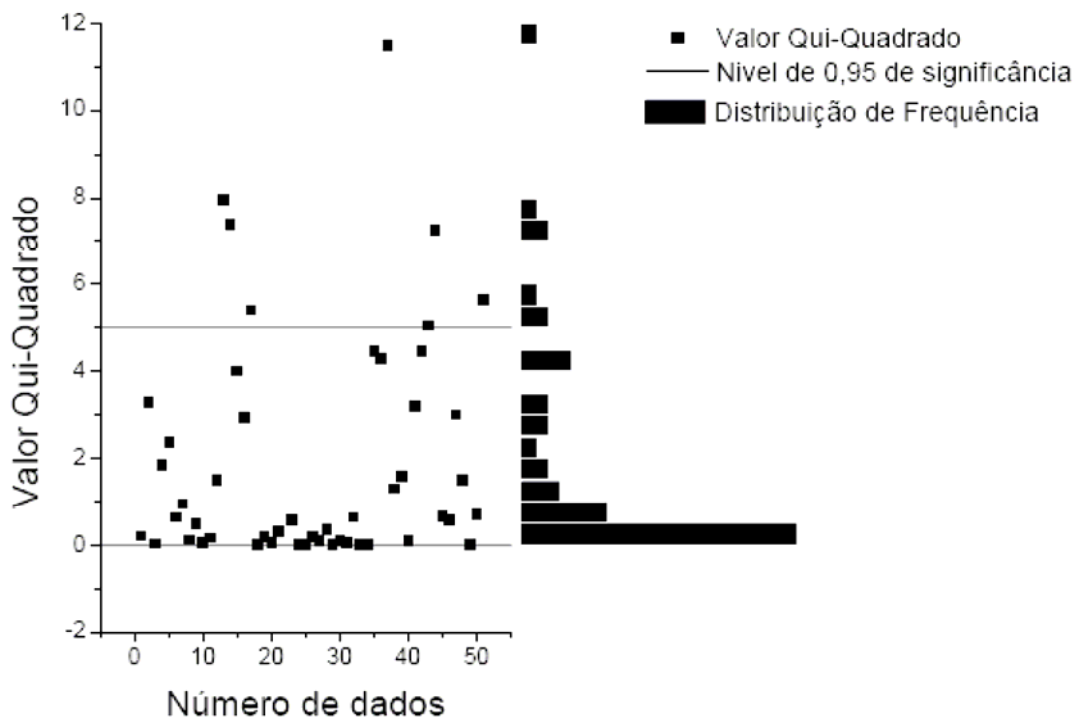
comparar os resultados obtidos com a curva de calibração e o resultado conhecido desta amostra certificada. Para isto, foi utilizada a amostra certificada IAEA-327, e o resultado está mostrado na figura 15. Apesar dos intervalos medidos de 95% de confiança para as linhas gamas de 185,9 keV e 860,47 keV um pouco largos, isto não afeta o resultado geral, uma vez que não foram utilizados individualmente para estimar as atividades do urânio e tório respectivamente. Consideramos a validação adequada para as medidas a serem realizadas.



**Figura 15** – Validação para a curva de eficiência obtida com a amostra certificada IAEA-385 a partir da amostra

### 5.3 ATIVIDADES

As atividades foram calculadas como descrito no tópico 4.3.1 do capítulo anterior para cada série e sub-série, e os resultados obtidos mostrados são da média ponderada pelos respectivos desvios. Para verificar se estas médias ponderadas da atividades, estimadas para o  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{226}\text{Ra}$  são representativas dos valores individuais estimados pelas linhas gamas, utilizamos o teste do Qui-Quadrado ( $\chi^2$ ), como descrito no tópico 4.3.2 do capítulo anterior. Os valores dos  $\chi^2$  foram calculados através da equação 26, e foram plotados pelo *software* Origin 7.0, como mostra na figura a seguir.



**Figura 16** – Distribuição dos valores dos Qui-Quadrados das medidas das atividades para o perfil amostrado.

Para o nível de significância de 95% o número de rejeição esperado, (neste caso com 54 dados), é de até 3. Na figura 16, pode-se ver 7 valores fora desse nível de significância, dos quais apenas um está o dobro acima do valor máximo para esse nível de significância. Desta forma pode-se considerar que os resultados são representativos das estimativas individuais. Os Limites Mínimos de Detecção (LLD), em  $\text{Bq.Kg}^{-1}$ , para o sistema foram:  $1,25 \text{ Bq.Kg}^{-1}$  para o  $^{232}\text{Th}$ ,  $2,44 \text{ Bq.Kg}^{-1}$  para o  $^{238}\text{U}$  e  $2,77 \text{ Bq.Kg}^{-1}$  para o  $^{40}\text{K}$ .

Como descrito no tópico 4.3.1 do capítulo anterior, o perfil amostrado compõe-se de calcários (amostras 209(a), 209(b), 207, 205 e 201,5), folhelhos betuminosos (amostras 200, 210, 208, 206 e 204), ritmitos (amostras 203, 202 e 201) e folhelhos em estágio gradativo de decomposição (solo) (amostras 301, 302 e 303). A atividade para o perfil amostrado está na figura 17.

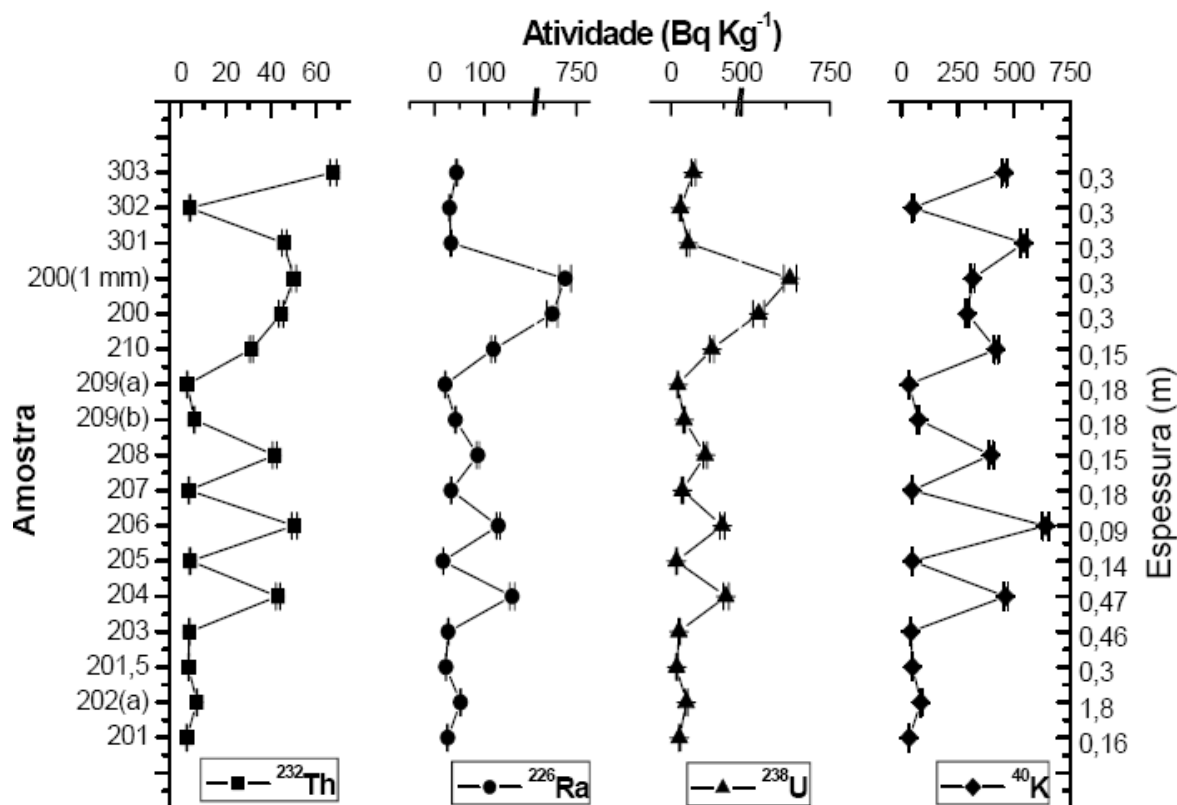


Figura 17 – Concentração da Atividade de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{40}\text{K}$  nas amostras.

Na escala vertical a direita é fornecida a espessura das amostras, porém a soma das espessuras não corresponde a altura do paredão, pois algumas amostras estão dispostas em seqüência no paredão e outras estão separadas por um intervalo não amostrado, ver figura 10.

Vê-se que as atividades medidas variaram de 2.69 até 67.7Bq.Kg<sup>-1</sup> para o <sup>232</sup>Th, de 13.12 até 636.71 Bq.Kg<sup>-1</sup> para o <sup>238</sup>U, de 17.26 até 706.57 Bq.Kg<sup>-1</sup> para o <sup>226</sup>Ra e de 33,85 até 543.45 Bq.Kg<sup>-1</sup> para o <sup>40</sup>K. Estes valores estão todos bem acima do LLD do sistema.

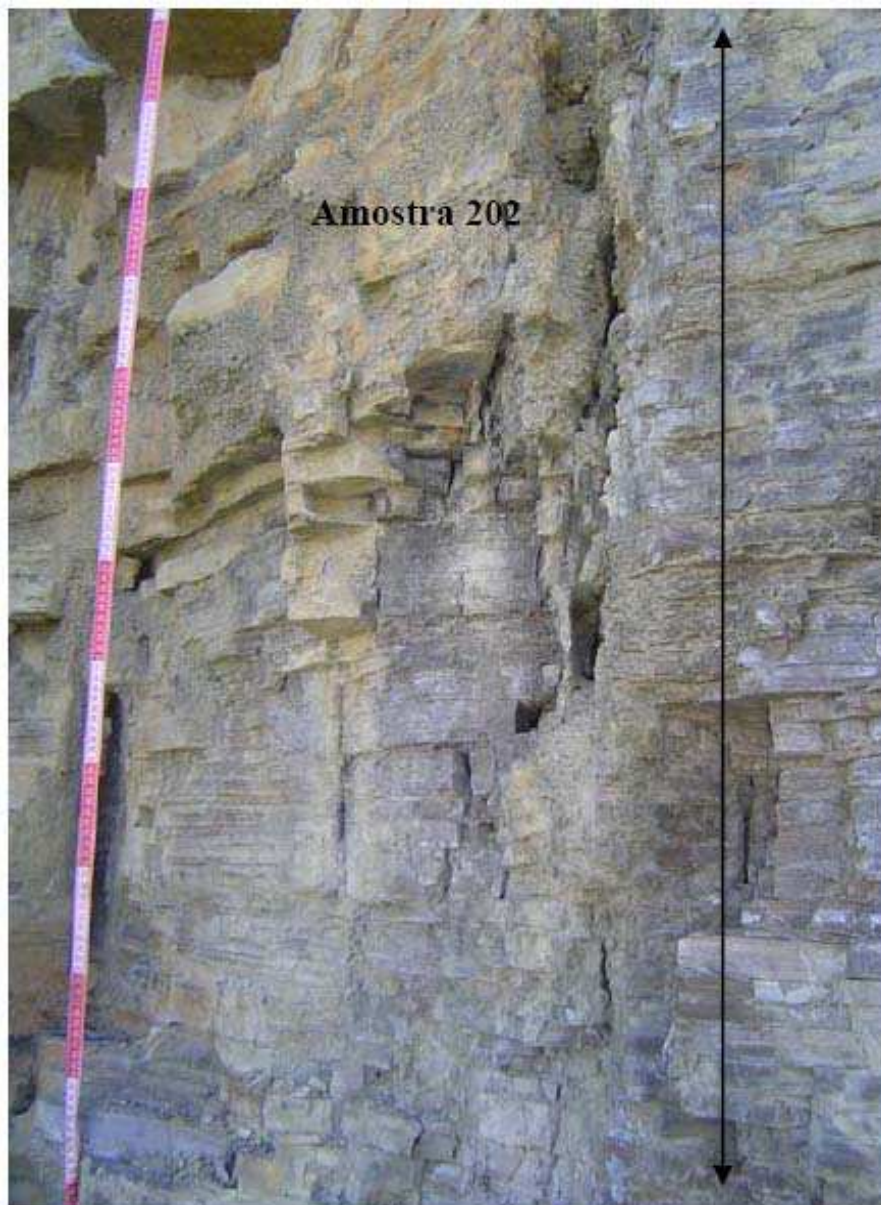
Para os rigolitos em estágio gradativo de decomposição houve uma variação de <sup>226</sup>Ra e <sup>238</sup>U, e não houve praticamente variação para <sup>40</sup>K e <sup>232</sup>Th. Pode-se ainda observar que as amostras de folhelho betuminoso obtiveram valores mais altos de concentração de atividade para todos os radionuclídeos analisados, os ritmitos apresentaram valores intermediários para <sup>226</sup>Ra e <sup>238</sup>U e valores iguais aos dos calcários para <sup>40</sup>K <sup>232</sup>Th, e os calcários obtiveram os menores valores para <sup>226</sup>Ra e <sup>238</sup>U como vemos na tabela 12.

**Tabela 12** – Valores médios das concentrações de atividade dos calcários, folhelhos e ritmitos.

	<sup>226</sup> Ra (Bq.Kg <sup>-1</sup> )	<sup>238</sup> U (Bq.Kg <sup>-1</sup> )	<sup>232</sup> Th (Bq.Kg <sup>-1</sup> )	<sup>40</sup> K (Bq.Kg <sup>-1</sup> )
Folhelho betuminoso	119,7 ± 1,8	125,5 ± 2,6	41,6 ± 0,4	382,0 ± 3,9
Calcário	23,0 ± 0,4	17,80 ± 0,09	3,75 ± 0,09	47,37 ± 0,09
Ritmito	30,0 ± 0,6	23,0 ± 1,3	4,04 ± 0,12	47,6 ± 1,3

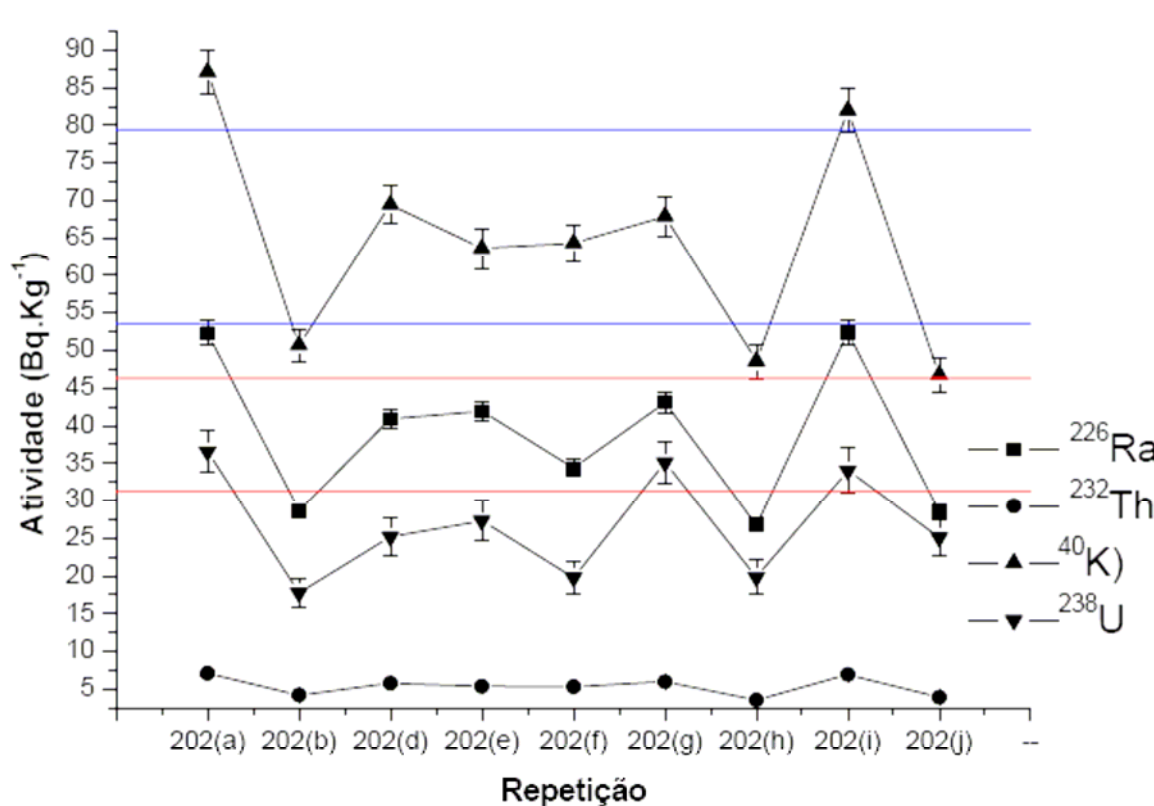
### 5.3.1 Estudo da Variabilidade da Amostra 202

Para verificar a variabilidade da amostragem, foram coletadas 9 alíquotas da amostra 202 (região do paredão que foi definida como amostra 202), como foi mostrado no tópico 4.2.1. Esta amostra está próxima da base do perfil amostrado e tem profundidade de aproximadamente 1,80 m (ver figura 18).



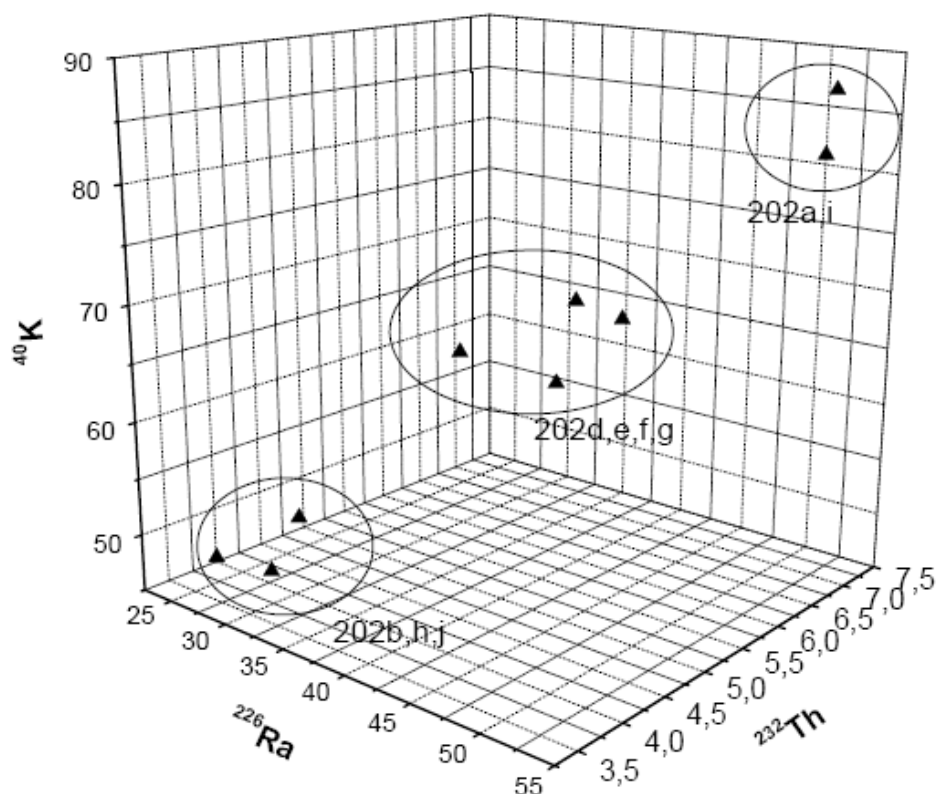
**Figura 18** – Local da amostra 202

O resultado do estudo de variabilidade para a atividade na amostra 202 é mostrado na figura 19.



**Figura 19** – Perfil das concentrações de atividades de  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  nas alíquotas da amostra 202.

Nota-se que as concentrações dos radionuclídeos estudados têm uma variação significativa. Para o intervalo de confiança de 95% da distribuição de Student, as valores não podem ser consideradas da mesma distribuição normal, existem três valores abaixo do intervalo de confiança e dois valores acima, como mostram as barras azuis e vermelhas na figura 16 para o  $^{40}\text{K}$  e  $^{226}\text{Ra}$  respectivamente. Para o  $^{232}\text{Th}$  e  $^{238}\text{U}$  os resultados são semelhantes. Pode-se ver também que há uma forte correlação entre os radionuclídeos estudados, como mostra a figura 20.

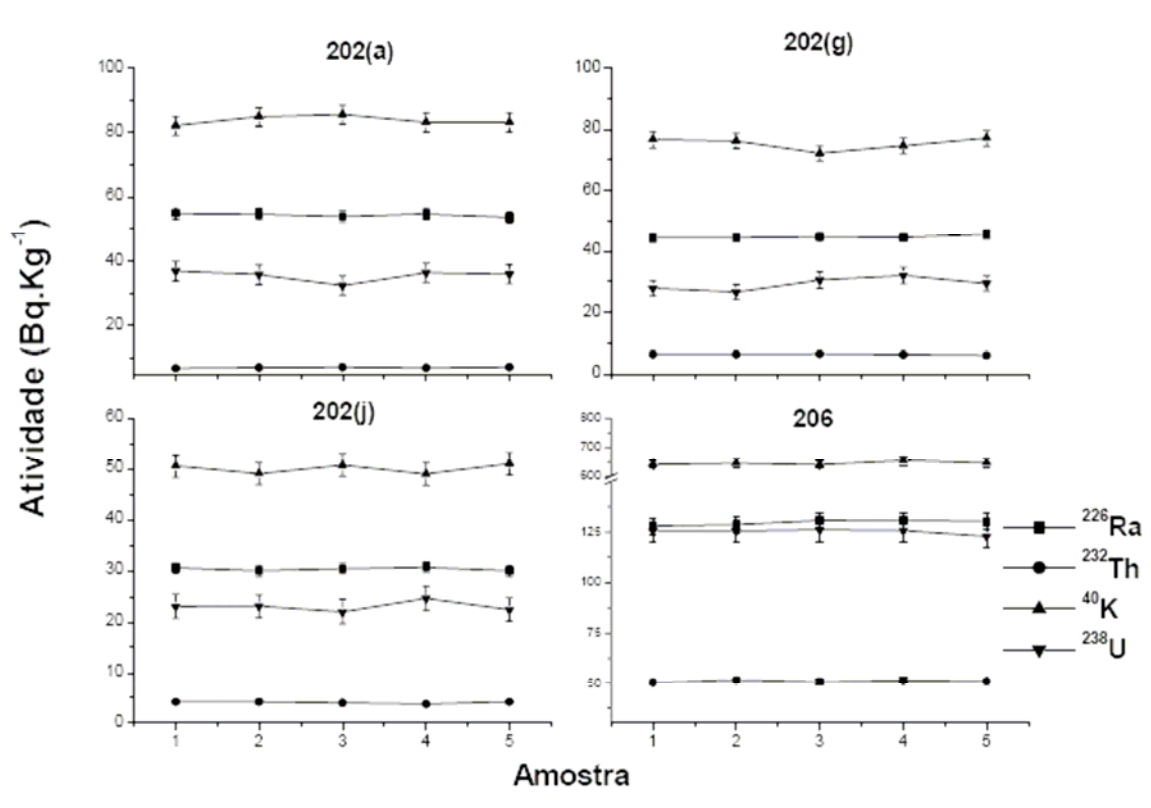


**Figura 20** – Correlação das atividades dos radionuclídeos  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  para as repetições da amostra 202

Três níveis de concentração de atividade podem ser observados na figura 20: amostras com atividades mais altas 202(a) e 202(i), com atividade intermediária 202(d), 202(e), 202(f) e 202(g) e amostras com a atividade mais baixa 202(b), 202(h) e 202(j). Pode-se concluir que a amostra 202 na verdade trata-se de três sub-amostras. Este resultado mostra que a faixa de 1,80 m, que foi chamada de amostra 202, figura 18, apresenta uma variabilidade compatível com a variabilidade entre amostras de calcários e ritmitos (que tem espessura entre 14 e 50 cm aproximadamente).

### 5.3.2 Estudo da Reprodutibilidade

Para verificar a reprodutibilidade do sistema de medidas foram realizadas repetidas medidas da mesma amostra, em ordem aleatória. Para este estudo escolhemos três alíquotas da amostra 202, uma de cada nível de radioatividade, e a amostra 206. Os resultados estão mostrados na figura 21.

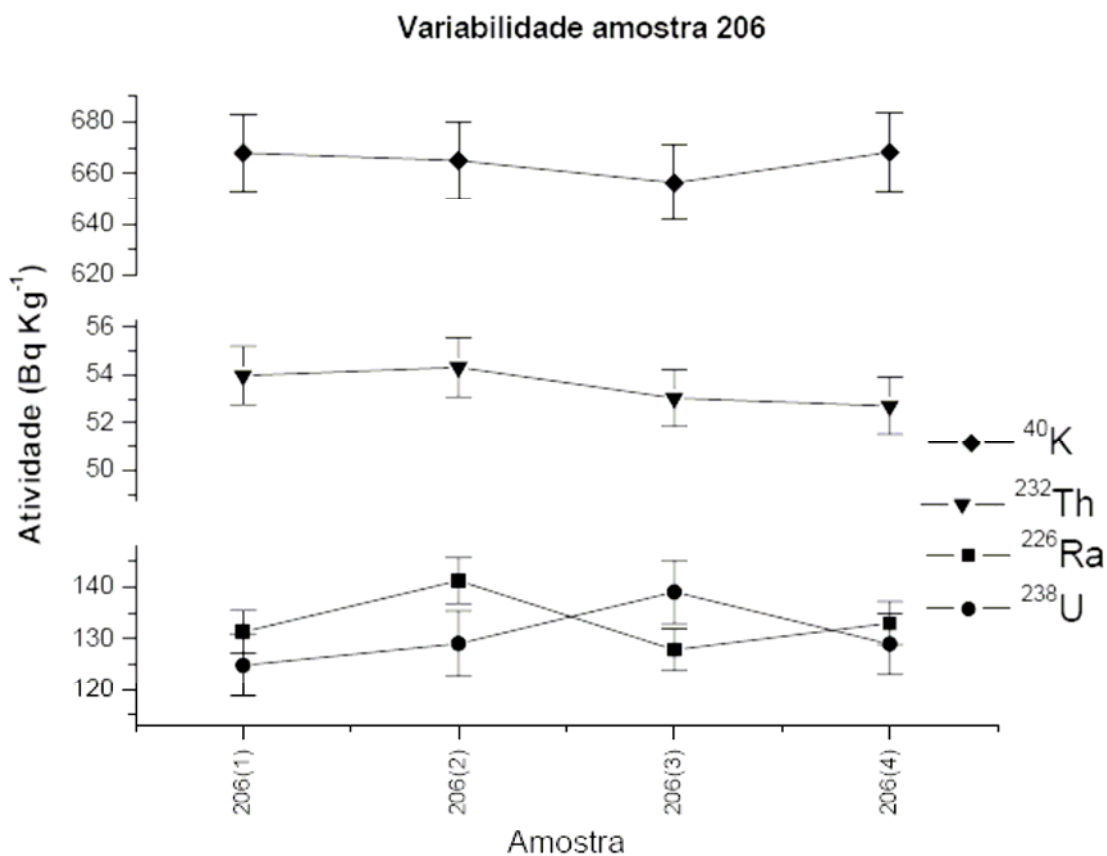


**Figura 21** – Estudo da reprodutibilidade das amostras 202(a), 202(g), 202(j) e 206.

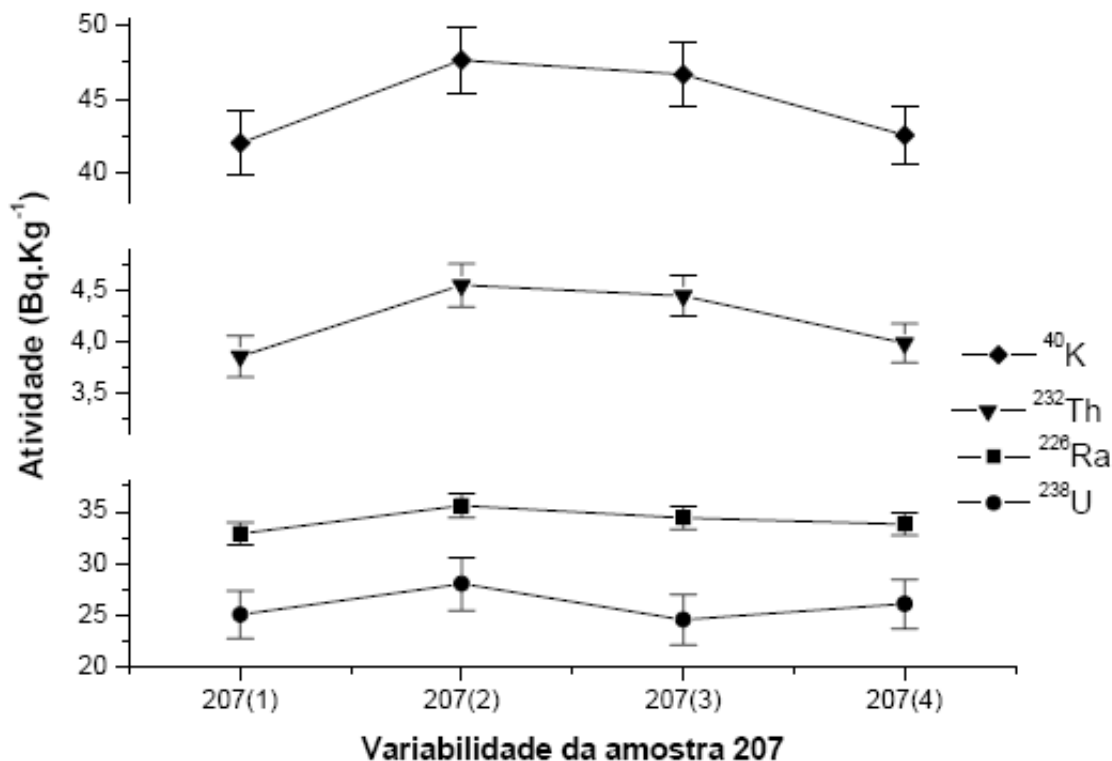
Pode-se verificar que as variações estão todas dentro da margem de desvio experimental, portanto é razoável concluir que o sistema reproduz satisfatoriamente as medidas.

### 5.3.3 Estudo da Variabilidade das amostras 206 e 207

Para verificar a homogeneidade das amostras coletadas, foram preparadas posteriormente quatro alíquotas das amostras 206 e 207 que são respectivamente folhelho betuminoso e calcário. Os resultados obtidos estão mostrados nas figuras 22 e 23.



**Figura 22** – Estudo da variabilidade da Atividade de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{40}\text{K}$  na amostra 206

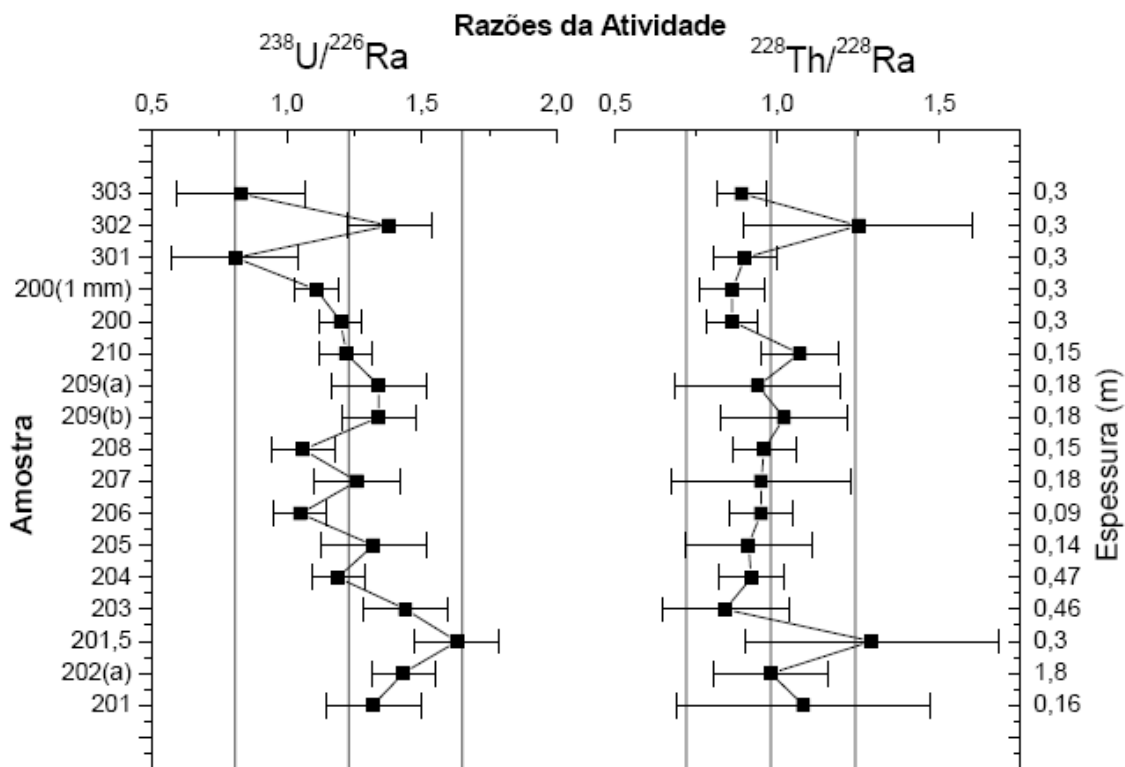


**Figura 23** – Estudo da variabilidade da Atividade de  $^{232}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{238}\text{U}$  e  $^{40}\text{K}$  na amostra 207

As maiores variações encontradas estão dentro dos desvios e não passam de 15 %. Podemos assim considerar as amostras homogêneas dentro deste percentual.

#### 5.4 ESTUDO DO EQUILIBRIO NAS SÉRIES DO $^{238}\text{U}$ E $^{232}\text{Th}$

Conforme descrito no tópico 4.3 do capítulo anterior, através das sub-séries estimadas para cada série seria possível identificar desequilíbrios recentes de até 57,5 anos através da série do  $^{232}\text{Th}$  e desequilíbrios mais antigos de até 16020 anos através da série do  $^{238}\text{U}$ . Os resultados estão mostrados na figura 24.

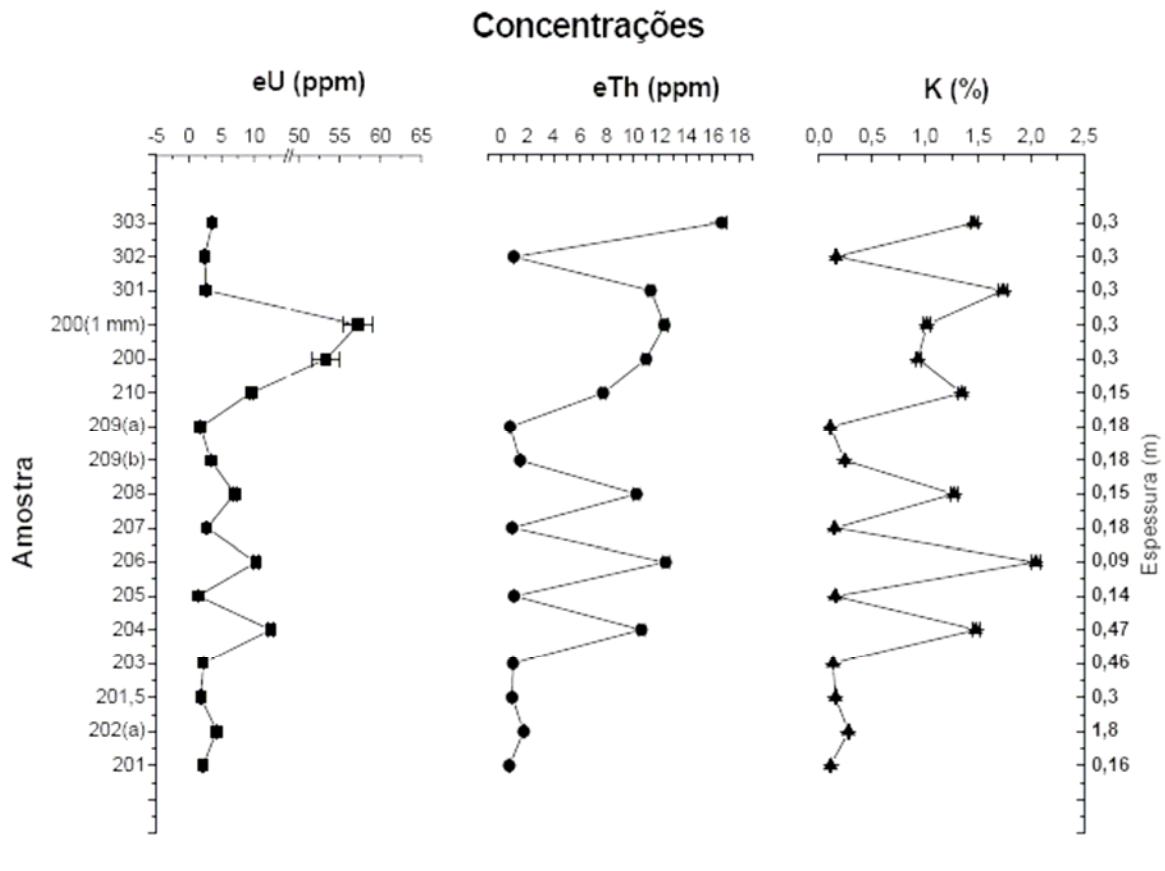


**Figura 24** – Razões  $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$  e  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$  respectivamente para as séries do urânio e tório nas amostras do perfil estudado.

Os desvios mostrados na figura 24 estão multiplicados por um fator dois, e as barras externas são os intervalos de confiança de 95% em torno da média (barra central). Pode-se então concluir que estatisticamente tanto a série do tório quanto a série do urânio estão em equilíbrio, indicando que não houve um processo, recente e ou antigo, causador de desequilíbrio nestas séries, nas amostras do perfil estudado.

## 5.5 CONCENTRAÇÕES DE RADIONUCLÍDEOS

Na figura 25 estão mostradas as concentrações de urânio, tório e potássio nas amostras.



**Figura 25** – Perfil de concentrações das amostras

Há uma forte distinção entre os folhelhos betuminosos e os calcários e ritmitos, em relação às concentrações de radionuclídeos. Na tabela 13, os resultados obtidos podem ser comparados com resultados encontrados na literatura.

**Tabela 13** – Resultados obtidos neste trabalho e resultados encontrados na literatura

	Fonte	Formação	Variações		
			eU (ppm)	eTh (ppm)	K %
Bacia do Paraná (Sedimentos Permianos)	Resultado deste trabalho	Irati (Sapopema PR)	1,4 – 57,2	0,7 – 12,4	0,1 - 2
	Carlos (2004)	Irati (Limeira SP)	1,2 – 12,7	0,4 – 3,2	0,02 – 0,2
	Carlos (2004)	Corumbatai (Limeira SP)	0,54 – 3,1	0,2 – 15,2	0,01 – 3,5
Bacia do São Francisco (Sedimentos Neoproterozóicos)	Ribeiro (2001b)	Serra da Santa Elena (Alvorada do Norte GO)	1,0 – 2,4	2,7 – 7,1	0,7 – 2,0
	Ribeiro (2001b)	Sete Lagoas (Alvorada do Norte GO)	-	2,0 <sup>*</sup>	0,3 – 0,4
	Ribeiro (2001b)	Formação Palmas do Monte Alto (Alvorada do Norte GO)	4,9 <sup>†</sup>	15,1 <sup>†</sup>	3,8 <sup>†</sup>

- Valores abaixo do LLD

\* Valor médio para a Formação

† Valor para um ponto específico da Formação

Analisando-se a Tabela 13, pode-se ver que os valores estão de acordo com os obtidos por Carlos (2004), para a mesma Formação, e para a Formação Corumbatai, e também estão na mesma ordem de grandeza com valores obtidos por Ribeiro (2001b), para rochas sedimentares Neoproterozóicas da Bacia do São Francisco.

### 5.5.1 Correlações entre as concentrações dos radionuclídeos

Nas figuras 26, 27 e 28 estão mostradas as correlações binárias obtidas para o perfil amostrado.

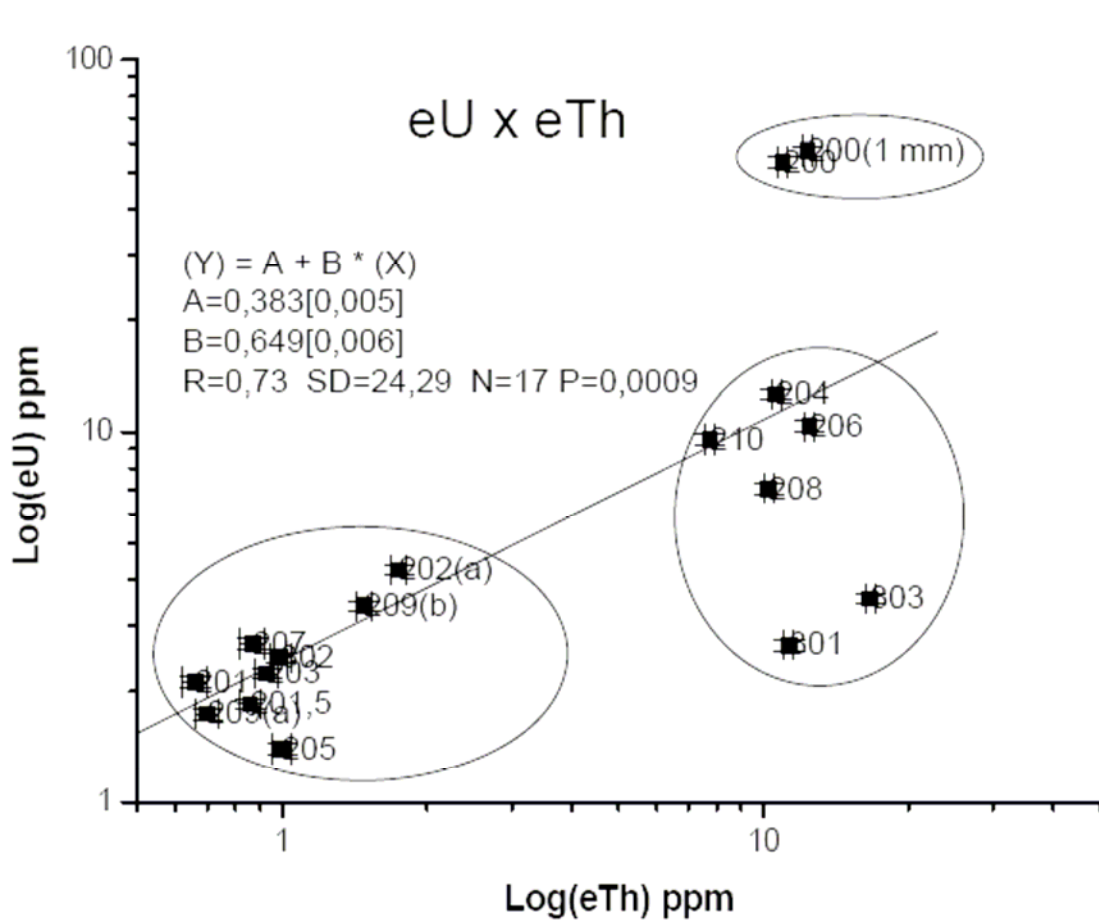


Figura 26 – Correlação entre a concentração de urânio e tório nas amostras

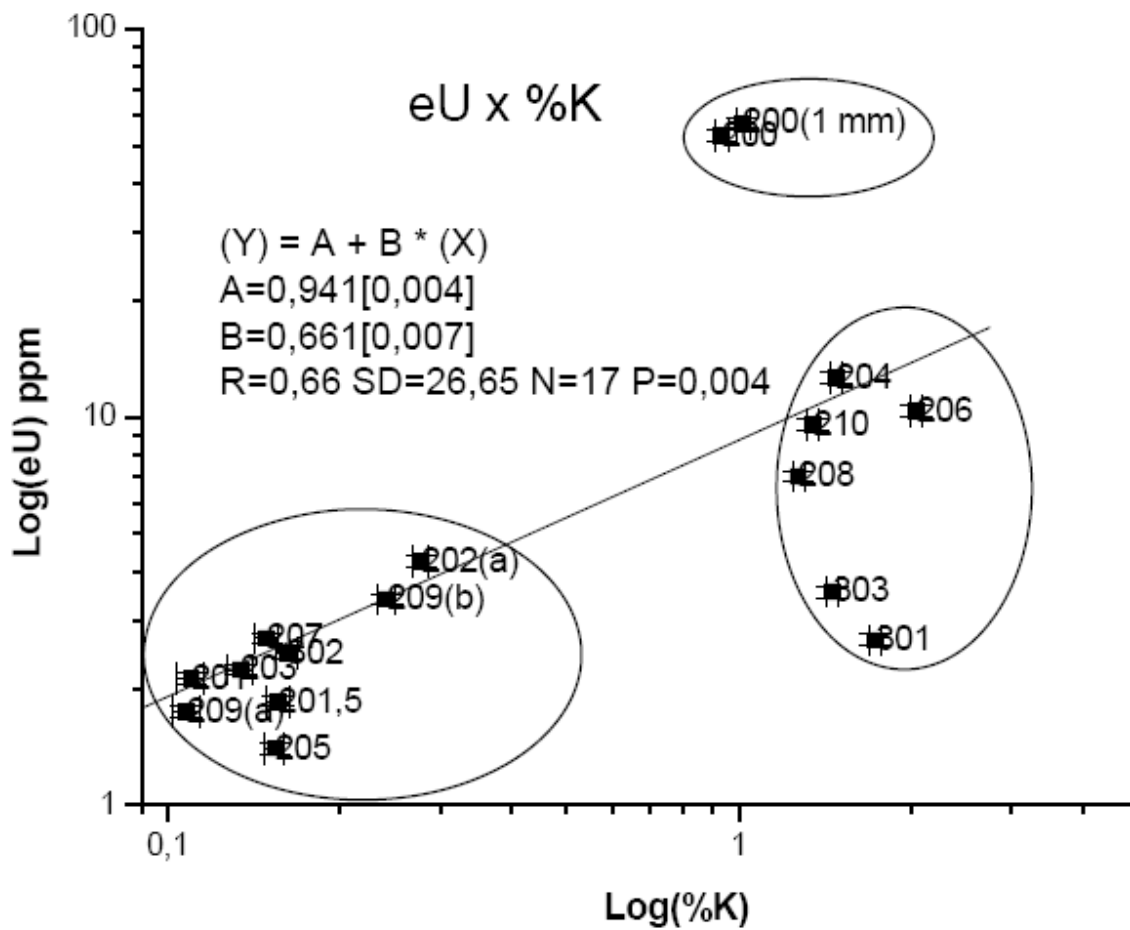
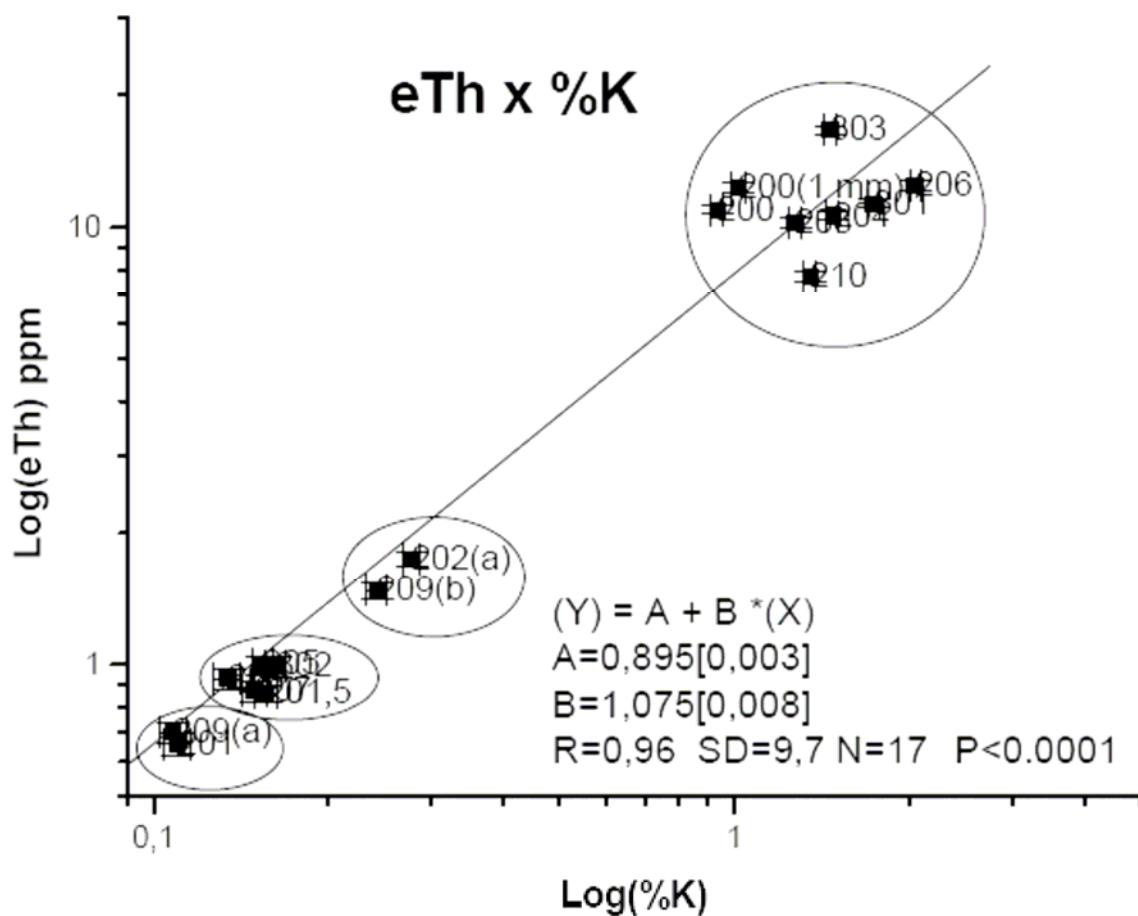


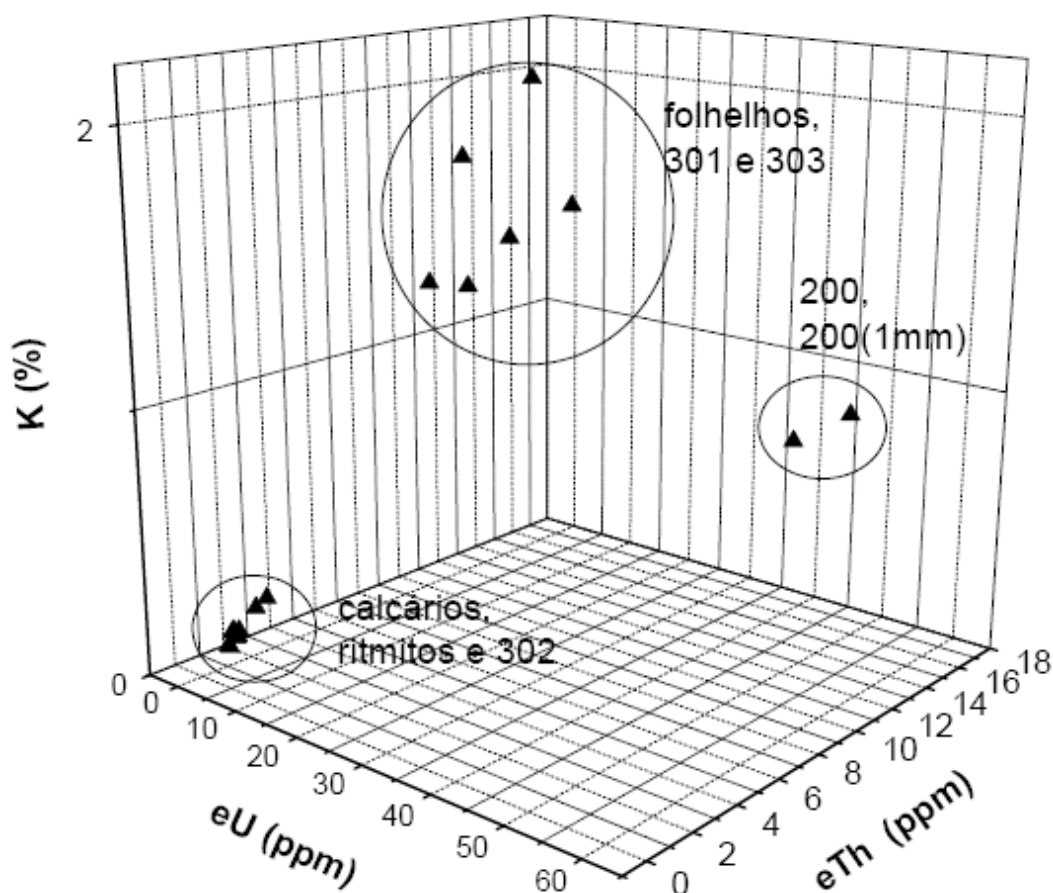
Figura 27 – Correlação entre a concentração de urânio e potássio nas amostras



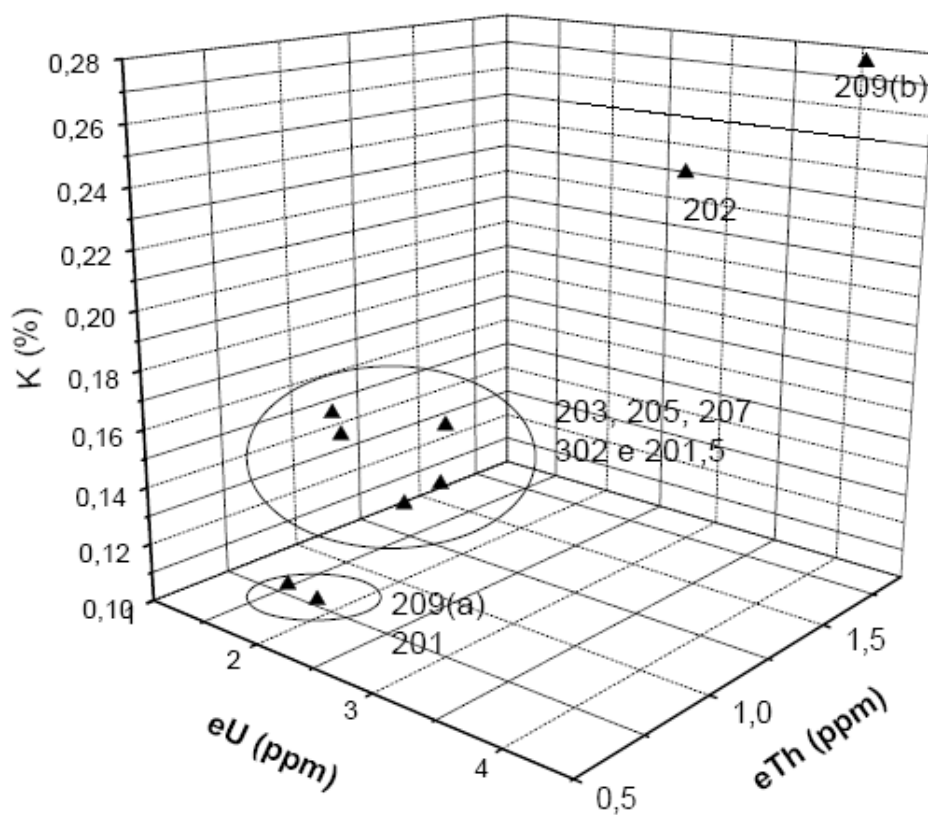
**Figura 28** – Correlação entre a concentração de tório e potássio nas amostras

É importante observar duas variáveis nas figuras 26, 27 e 28: o coeficiente de correlação para cada diagrama binário e o agrupamento das amostras. Os coeficientes de correlação são respectivamente 0,73, 0,66 e 0,96 para os diagramas binários (eU x eTh), (eU x %K) e (eTh x %K). Esta última correlação é mais significativa que as outras duas que envolvem o urânio, devido à maior mobilidade do urânio, que em ambiente oxidante é lixiviado e ou solubilizado sendo então levado e depositado sob condições redutoras. O mesmo não ocorre com o tório e com o potássio que permanecem estáveis pois não são afetados pelo tipo de ambiente. Conseqüentemente a razão (eTh/K), pode ser usada para distinguir diferentes tipos de sedimentos, pois reflete assim propriedades mineralógicas da rocha matriz formadora do sedimento (Doveton, 1992). Pode-se ver que existem dois grupos principais de amostras, os calcários,

ritmitos e solos 301 e 303, com baixas concentrações de tório (de 0 até 2 ppm) e potássio (de 0 até 0,3 %, e os, folhelhos e solo 302 com concentrações maiores (de 8 até 12,5 ppm) de tório e (de 0,8 até 2 %) de potássio. Além disso é possível ver nas correlações (eU x eTh) e (eU x %K) que a amostra 200 e 200(1mm), que é um folhelho, está enriquecida em relação aos demais folhelhos. A separação dos grupos de amostras de acordo com as suas respectivas concentrações pode ser melhor visualizada nas figuras 29 e 30, onde a figura 30 é uma ampliação, (da região onde estão os calcários, ritmitos e amostra 302), da figura 29.

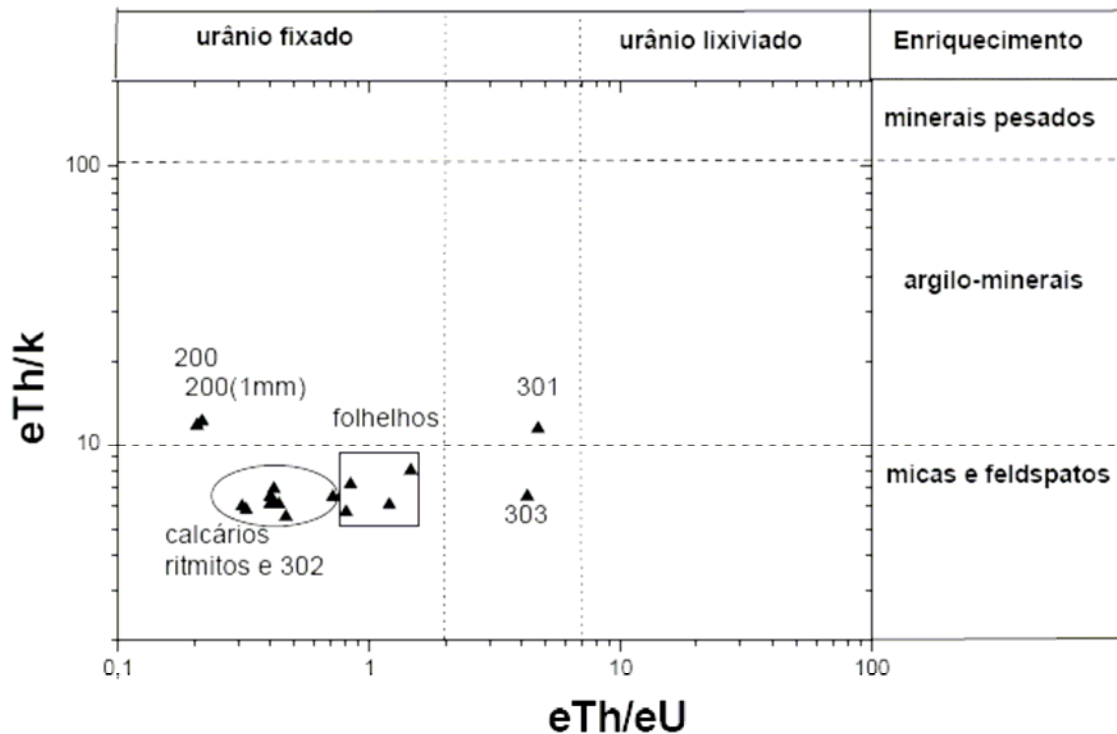


**Figura 29** – Correlação 3D entre a concentração de equivalente urânio, tório e porcentagem de potássio nas amostras



**Figura 30** – Correlação 3D entre a concentração de equivalente urânio, tório e porcentagem de potássio nas amostras ( Calcários, ritmitos e amostra 302)

A razão  $eU/eTh$  é usada como um indicador das condições oxidantes ou redutoras do ambiente. Varia de 0 até 2 para ambiente não oxidantes e é muito maior que 7 para ambientes fortemente oxidantes (Adams e Weaver, 1958). Estes resultados são mostrados na figura 31.



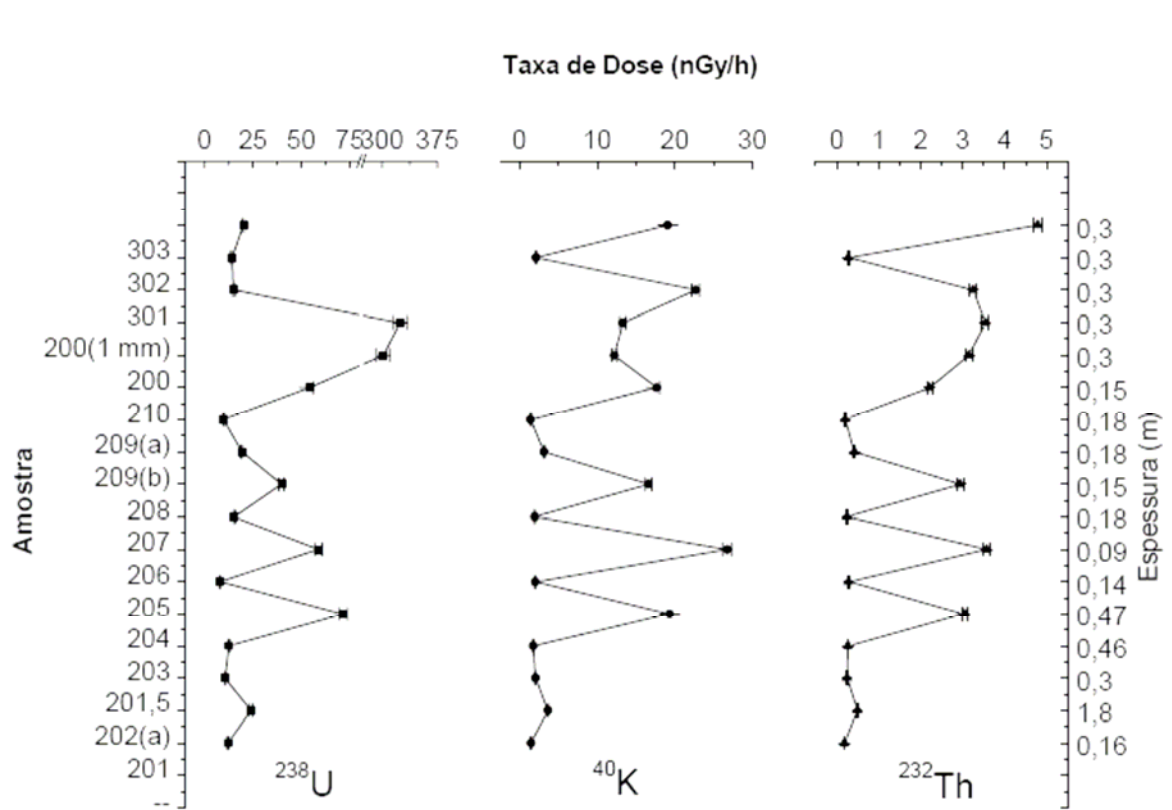
**Figura 31** – Cross plot de tório-potássio e tório-urânio do perfil estudado

Na figura 31 vemos que os rigolitos 301 e 302 são os que apresentam maior razão  $eTh/eU$ , estando próximos da região de lixiviação do urânio. Estas amostras estão acima do paredão. Por outro lado, a amostra 200 é a amostra que forma o topo do paredão e que apresenta menor razão  $eTh/eU$ . Isto pode ser uma indicação de que o ambiente oxidante das amostras 301 e 302 está favorecendo a lixiviação do urânio, o qual é fixado no topo do paredão na amostra 200, explicando assim o enriquecimento deste folhelho em relação ao demais do perfil exposto.

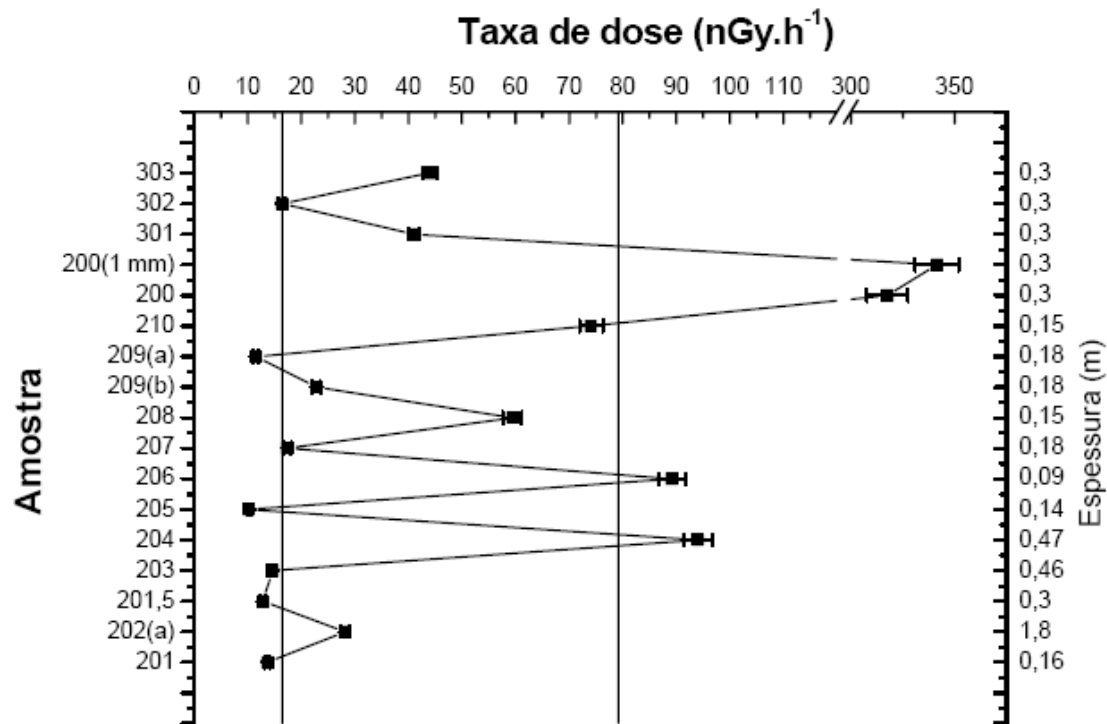
A escala vertical da figura 31, razão  $eTh/K$ , fornece a indicação mineralógica dos sedimentos e mostra que tanto calcários e ritmitos quanto folhelhos e rigolitos têm constituição mineralógica semelhantes.

## 5.6 DOSES DOS RADIONUCLÍDEOS

As doses foram calculadas conforme descrito no tópic 4.3.5 através das atividades das amostras. Os resultados para taxa de dose por radionuclídeo e taxa de dose total estão mostrados respectivamente nas figuras 32 e 33.



**Figura 32** – Taxa de Dose por radionuclídeo em (nGy/h) do Perfil Amostrado



**Figura 33** – Taxa de Dose Total em (nGy/h) das amostras do Perfil Amostrado

Na figura 32 pode-se ver que a maior contribuição para a taxa de dose total é devida ao  $^{226}\text{Ra}$ , seguida pelo  $^{40}\text{K}$ , e a menor contribuição é a do  $^{232}\text{Th}$ . Na figura 33 as barras representam as médias das taxas de dose para os calcários e ritmitos que é de  $16,4 \text{ nGy.h}^{-1}$  e para os folhelhos que é de  $79,17 \text{ nGy.h}^{-1}$ . Estas médias não levam em conta as contribuições das amostras: 301, 302 e 303 (rigolitos); e amostras 200(1mm) e 200 que estão enriquecidas em  $^{238}\text{U}$ , como pode-se ver nas figuras 32 e 33 e cujo valor da dose é  $329,5 \text{ nGy.h}^{-1}$ . De acordo com (UNSCEAR,2000) a média mundial da taxa de dose absorvida varia de 18 a  $93 \text{ nGy.h}^{-1}$ , e a faixa de variação típica varia da 10 a  $200 \text{ nGy.h}^{-1}$ , portanto com exceção das amostras 200 e 200(1mm) as demais estão dentro da média mundial e não representam riscos em termos de proteção radiológica. Orgun (2007) obteve valores de Dose ( $\text{nGy.h}^{-1}$ ), para rochas graníticas variando entre  $178,0 - 448,0 \text{ nGy.h}^{-1}$ , para rochas vulcânicas variando entre  $79,9 - 273,2$  e para rochas metamórficas variando entre  $1,1 - 52,6$ . Estas rochas em geral são

amplamente usadas na construção cívil , por este motivo é muito importante, para esses estudos, aprofundar mais em termos de grandezas associadas a riscos radiológicos como por exemplo Atividade do Radio Equivalente e Índice de Danos por Radiação Externa.

## 6 CONCLUSÕES

O perfil de rochas sedimentares da Formação Irati estudado mostrou uma significativa diferença em termos de concentração de radionuclídeos naturais  $^{238}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$  para os calcários e folhelhos, sendo que a concentração mais alta foi medida para os folhelhos. Já os ritmitos apresentaram valores bem próximos aos dos calcários.

As amostras estatisticamente não apresentaram desequilíbrio nas séries do urânio e tório, portanto não sofreram processos de intemperismo que pudessem levar a esse tipo de desequilíbrio.

As amostras 200 e 200(1mm), apresentaram valores de atividade bem acima dos demais do perfil amostrado, e isto associado à razão  $e\text{Th}/e\text{U}$  menor entre todas as amostras, pode indicar que está ocorrendo lixiviação de urânio, dos níveis acima, amostras 301 e 303 (que apresentaram valores mais altos da razão) até o topo do paredão. Isto é razoável uma vez que os rigolitos são ambientes oxidantes, favorecendo a lixiviação do urânio e este ao chegar ao folhelho, ambiente redutor, precipita ocasionando assim o enriquecimento.

Em termos da razão  $e\text{Th}/\text{K}$ , que fornece características mineralógicas, todas as amostras apresentaram valores próximos de 6, apresentando assim características mineralógicas semelhantes.

Os maiores valores da taxa de dose absorvida encontrados foram para as amostras 200 e 200(1mm),  $329,5 \text{ nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ , porém este valor não apresenta risco em termos radiológicos, dado a principal aplicação desta rocha, como corretivo do pH do solo para agricultura.

## REFERÊNCIAS

Adams, J. A. S., Weaver, C. E., "Thorium to uranium ratios as indications of sedimentary processes: example of concept of geochemical facies" *Am. Assoc. Pet. Geol. Bull.* **42**, 387-430 (1958).

Anjos R.M., Veiga R., Macario K., Carvalho C., Sanches N., Bastos J., Gomes P.R.S., "Radiometric Analysis of Quaternary deposits from the Southeastern Brazilian Coast" – *Marine Geology*, **229**, 29-43 (2006).

ANSI/IEEE Std 325-, *IEEE Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Ray Detectors*. 1996.

Appoloni, C.R., *Notas de aula de física nuclear*. 2006.

Barros Neto, B., Scarminio, I. S., Bruns, R. E., "Como fazer experimentos: pesquisa e desenvolvimento na ciência e na indústria" Editora da Unicamp, Campinas SP, 2001.

Bastos, R. O., Ferreira, A. O., Appoloni C. R., "Self-Attenuation Correction in Gamma-Ray Spectrometric Analyses of Geological Samples Using the Transmission Method" *International Nuclear Atlantic Conference - 2007/ VII Encontro Nacional de Aplicações Nucleares*, Santos – SP, **Anais**, CD-ROM, paper 1449 (2007).

Burcham E. M., *Física Nuclear*, Editorial reverté, S.A., 1974.

Carlos D. U., Ribeiro F. B., Saad A. R., Nicolai S. H. A., "Radioactivity distribution in some Permian sediments from the Irati and Corumbataí Formations of the Paraná Basin, Southeastern Brazil," *Applied Radiation and Isotopes*, **60**, pp. 63-67 (2004).

Currie, L.A., *Limits for qualitative detection and quantitative determination—application to radiochemistry*. *Anal. Chem.* **40**, 586–593. (1968).

Debertin, K., Helmer, R. G., *Gamma and X-ray Spectrometry with Semiconductor Detectors*, North-Holland Amsterdam. (1988).

Doveton, J. H., Prenskey, S. E., "Geological Applications of wireline logs: a synopsis of development and trends. *Log Anal.* 33(3), 286-303, 1992.

El-Arabi A.M., "<sup>226</sup>Ra, <sup>232</sup>Th and <sup>40</sup>K Concentration in Igneous Rocks from Eastern Desert, Egypt and its Radiological Implications" – *Radiation Measurements*, **42**, 94-100 (2007).

Green, J. R., Margerison, D., "Statistical treatment of experimental data". Elsevier, (1978).

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

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

ISO. *Atomic and Nuclear Physics*, ISO 31-9. 1992a.

ISO. *Nuclear Reactions and Ionizing Radiation*, ISO 31-10, 1992b.

ICRP, ICRP Publication 60, *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*, Pergamon Press, Oxford. 1991.

ICRP, ICRP Publication 65, *Protection against Radon-222 at Home and Work*, International Commission on Radiological Protection, Pergamon Press, Oxford. 1993.

Kathren, R. L., *NORM Sources and Their Origins*. *Applied Radiation and Isotopes*, vol. 49, pp. 149 – 168. 1998.

Klement A. W. Jr., *Natural sources of environmental radiation*. In *Handbook of Environmental Radiation*, pp. 15-21, Press, Boca Raton, FL., 1982.

Knoll, G. F., "Radiation Detection and Measurement". 3<sup>rd</sup> ed, John Wiley & Sons, Inc. New York. (2000).

Leo, W. R., “*Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*”. 2<sup>nd</sup> ed, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg. (1994).

Örgün Y., Altınsoy N., Şahin S.Y., Güngör Y., Gültekin A.H., Karahan G., Karacık Z., “*Natural and Anthropogenic Radionuclides in Rocks and Beach Sands from Ezine Region (Çanakkale), Western Anatolia, Turkey*” – *Applied Radiation and Isotopes*, **65**, 739-747 (2007).

Petri S., Fulfar V. J. o, *Geologia do Brasil*, T. A. Queiroz/Edusp, São Paulo, 1983.

Pinesi J.P.P., Capítulo do livro, *A Bacia do Rio Tibagi*, de M. E. Medri pp. 21-38, Londrina, PR. Editora da UEL, (2002).

Powell B. A. , Hughes L. D., Soreefan A. M., Falta D., Wall M., DeVol T. A., “*Elevated Concentration of Primordial Radionuclides in Sediments from the Reedy River and Surrounding Creeks in Simpsonville, South Carolina*” – *Journal of Environmental Radioactivity*, **94**, 121-128 (2007).

Ribeiro F. B., Roque A., Boggiani P. C., Flexor J. M., “*Uranium and Thorium series disequilibrium in quaternary carbonate deposits from the Serra da Bodoquema and Pantanal do Miranda, Mato Grosso do Sul State, central Brasil*,” *Applied Radiation and Isotopes*, **54**, pp. 153-173 (2001a).

Ribeiro F. B., Roque A., “*Vertical distribution of Uranium, thorium and potassium and of volumetric heat production rates in the sediments of the São Francisco Basin, Central Brazil*,” *Applied Radiation and Isotopes*, **55**, pp. 393-405 (2001b).

Tauhata L., Salati I. P. A., Di Prinzio R. e Di Prinzio M. A. R. R., *Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos*. Rio de Janeiro- IRD/CNEN, 2003.

Borguetti, N. R.B, Borguetti, J. R., Rosa Filho, E. F., “*O Aquífero Guarani*” Disponível em: [www.oaquiferoguarani.com.br](http://www.oaquiferoguarani.com.br) , Acesso em 28 de Janeiro de 2008.

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

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

Vasconcellos R. M., *Geofísica em Levantamentos Geológicos no Brasil*, pp. 85-101, CPMR, Rio de Janeiro (1994).

Zulliger, M. R., Middleman, L. M., Aitken, D., Linearity and Resolution of Semiconductor Radiation Detector. IEEE Transactions on Nuclear Science, v16 pp. 47-61, 1969.

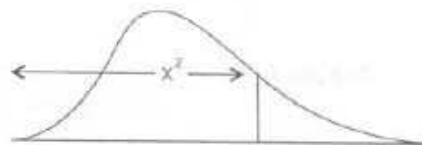
## **ANEXOS**

**ANEXO 1**

TABELA DOS PARAMETROS PARA DISTRIBUIÇÃO DOS  $\chi^2$

## ANEXO 1 – TABELA DOS PARAMETROS PARA DISTRIBUIÇÃO DOS $\chi^2$

**Tabela A.3** Pontos de probabilidade da distribuição  $\chi^2$  com  $v$  graus de liberdade.



v	Área de probabilidade													
	0,995	0,99	0,975	0,95	0,9	0,75	0,5	0,25	0,1	0,05	0,025	0,01	0,005	0,001
1	---	---	---	---	0,016	0,102	0,455	1,32	2,71	3,84	5,02	6,63	7,88	10,8
2	0,010	0,020	0,051	0,103	0,211	0,575	1,39	2,77	4,61	5,99	7,38	9,21	10,6	13,8
3	0,072	0,115	0,216	0,352	0,584	1,21	2,37	4,11	6,25	7,81	9,35	11,3	12,8	16,3
4	0,207	0,297	0,484	0,711	1,06	1,92	3,36	5,39	7,78	9,49	11,1	13,3	14,9	18,5
5	0,412	0,554	0,831	1,15	1,61	2,67	4,35	6,63	9,24	11,1	12,8	15,1	16,7	20,5
6	0,676	0,872	1,24	1,64	2,20	3,45	5,35	7,84	10,6	12,6	14,4	16,8	18,5	22,5
7	0,989	1,24	1,69	2,17	2,83	4,25	6,35	9,04	12,0	14,1	16,0	18,5	20,3	24,3
8	1,34	1,65	2,18	2,73	3,49	5,07	7,34	10,2	13,4	15,5	17,5	20,1	22,0	26,1
9	1,73	2,09	2,70	3,33	4,17	5,90	8,34	11,4	14,7	16,9	19,0	21,7	23,6	27,9
10	2,16	2,56	3,25	3,94	4,87	6,74	9,34	12,5	16,0	18,3	20,5	23,2	25,2	29,6
11	2,60	3,05	3,82	4,57	5,58	7,58	10,3	13,7	17,3	19,7	21,9	24,7	26,8	31,3
12	3,07	3,57	4,40	5,23	6,30	8,44	11,3	14,8	18,5	21,0	23,3	26,2	28,3	32,9
13	3,57	4,11	5,01	5,89	7,04	9,30	12,3	16,0	19,8	22,4	24,7	27,7	29,8	34,5
14	4,07	4,66	5,63	6,57	7,79	10,2	13,3	17,1	21,1	23,7	26,1	29,1	31,3	36,1
15	4,60	5,23	6,26	7,26	8,55	11,0	14,3	18,2	22,3	25,0	27,5	30,6	32,8	37,7
16	5,14	5,81	6,91	7,96	9,31	11,9	15,3	19,4	23,5	26,3	28,8	32,0	34,3	39,3
17	5,70	6,41	7,56	8,67	10,1	12,8	16,3	20,5	24,8	27,6	30,2	33,4	35,7	40,8
18	6,26	7,01	8,23	9,39	10,9	13,7	17,3	21,6	26,0	28,9	31,5	34,8	37,2	42,3
19	6,84	7,63	8,91	10,1	11,7	14,6	18,3	22,7	27,2	30,1	32,9	36,2	38,6	43,8
20	7,43	8,26	9,59	10,9	12,4	15,5	19,3	23,8	28,4	31,4	34,2	37,6	40,0	45,3
21	8,03	8,90	10,3	11,6	13,2	16,3	20,3	24,9	29,6	32,7	35,5	38,9	41,4	46,8
22	8,64	9,54	11,0	12,3	14,0	17,2	21,3	26,0	30,8	33,9	36,8	40,3	42,8	48,3
23	9,26	10,2	11,7	13,1	14,8	18,1	22,3	27,1	32,0	35,2	38,1	41,6	44,2	49,7
24	9,89	10,9	12,4	13,8	15,7	19,0	23,3	28,2	33,2	36,4	39,4	43,0	45,6	51,2
25	10,5	11,5	13,1	14,6	16,5	19,9	24,3	29,3	34,4	37,7	40,6	44,3	46,9	52,6
26	11,2	12,2	13,8	15,4	17,3	20,8	25,3	30,4	35,6	38,9	41,9	45,6	48,3	54,1
27	11,8	12,0	14,6	16,2	18,1	21,7	26,3	31,5	36,7	40,1	43,2	47,0	49,6	55,5
28	12,5	13,6	15,3	16,9	18,9	22,7	27,3	32,6	37,9	41,3	44,5	48,3	51,0	56,9
29	13,1	14,3	16,0	17,7	19,8	23,6	28,3	33,7	39,1	42,6	45,7	49,6	52,3	58,3
30	13,8	15,0	16,8	18,5	20,6	24,5	29,3	34,8	40,3	43,8	47,0	50,9	53,7	59,7

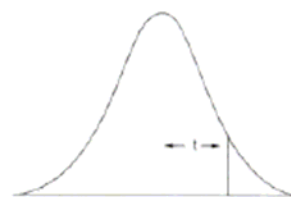
Fonte: Box, G. E. P.; Hunter, W. G., e Hunter, J. S., *Statistics for experimenters. An introduction to design, data analysis and model building*. Nova York, Wiley, 1978. Pearson, E. S. e Hartley, H. O. (eds.), *Biometrika tables for statisticians*, vol. I, 3ª ed., Cambridge University Press (1966). Reproduzida com autorização da John Wiley & Sons, Inc., Biometrika Trustees.

**ANEXO 2**

TABELA DOS PARAMETROS PARA DISTRIBUIÇÃO DE STUDENT

## ANEXO 2 – TABELA DOS PARAMETROS PARA DISTRIBUIÇÃO DE STUDENT

**Tabela A.2** Pontos de probabilidade da distribuição  $t$  com  $v$  graus de liberdade.



$v$	Área de probabilidade									
	0,4	0,25	0,1	0,05	0,025	0,01	0,005	0,0025	0,001	0,0005
1	0,325	1,000	3,078	6,314	12,706	31,821	63,657	127,32	318,31	636,62
2	0,289	0,816	1,886	2,920	4,303	6,965	9,925	14,089	22,326	31,598
3	0,277	0,765	1,638	2,353	3,182	4,541	5,841	7,453	10,213	12,924
4	0,271	0,741	1,533	2,132	2,776	3,747	4,604	5,598	7,173	8,610
5	0,267	0,727	1,476	2,015	2,571	3,365	4,032	4,773	5,893	6,869
6	0,265	0,718	1,440	1,943	2,447	3,143	3,707	4,317	5,208	5,959
7	0,263	0,711	1,415	1,895	2,365	2,998	3,449	4,029	4,785	5,408
8	0,262	0,706	1,397	1,860	2,306	2,896	3,355	3,833	4,501	5,041
9	0,261	0,703	1,383	1,833	2,262	2,821	3,250	3,690	4,297	4,781
10	0,260	0,700	1,372	1,812	2,228	2,764	3,169	3,581	4,144	4,587
11	0,260	0,697	1,363	1,796	2,201	2,718	3,106	3,497	4,025	4,437
12	0,259	0,695	1,356	1,782	2,179	2,681	3,055	3,428	3,930	4,318
13	0,259	0,694	1,350	1,771	2,160	2,650	3,012	3,372	3,852	4,221
14	0,258	0,692	1,345	1,761	2,145	2,624	2,977	3,326	3,787	4,140
15	0,258	0,691	1,341	1,753	2,131	2,602	2,947	3,286	3,733	4,073
16	0,258	0,690	1,337	1,746	2,120	2,583	2,921	3,252	3,686	4,015
17	0,257	0,689	1,333	1,740	2,110	2,567	2,898	3,222	3,646	3,965
18	0,257	0,688	1,330	1,734	2,101	2,552	2,878	3,197	3,610	3,922
19	0,257	0,688	1,328	1,729	2,093	2,539	2,861	3,174	3,579	3,883
20	0,257	0,687	1,325	1,725	2,086	2,528	2,845	3,153	3,552	3,850
21	0,257	0,686	1,323	1,721	2,080	2,518	2,831	3,135	3,527	3,819
22	0,256	0,686	1,321	1,717	2,074	2,508	2,819	3,119	3,505	3,792
23	0,256	0,685	1,319	1,714	2,069	2,500	2,807	3,104	3,485	3,767
24	0,256	0,685	1,318	1,711	2,064	2,492	2,797	3,091	3,467	3,745
25	0,256	0,684	1,316	1,708	2,060	2,485	2,787	3,078	3,450	3,725
26	0,256	0,684	1,315	1,706	2,056	2,479	2,779	3,067	3,435	3,707
27	0,256	0,684	1,314	1,703	2,052	2,473	2,771	3,057	3,421	3,690
28	0,256	0,683	1,313	1,701	2,048	2,467	2,763	3,047	3,408	3,674
29	0,256	0,683	1,311	1,699	2,045	2,462	2,756	3,038	3,396	3,659
30	0,256	0,683	1,310	1,697	2,042	2,457	2,750	3,030	3,385	3,646
40	0,255	0,681	1,303	1,684	2,021	2,423	2,704	2,971	3,307	3,551
60	0,254	0,679	1,296	1,671	2,000	2,390	2,660	2,915	3,232	3,460
120	0,254	0,677	1,289	1,658	1,980	2,358	2,617	2,860	3,160	3,373
$\infty$	0,253	0,674	1,282	1,645	1,960	2,326	2,576	2,807	3,090	3,291

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

**ANEXO 3**  
TEMPO DE UTILIZAÇÃO DO DETECTOR

**ANEXO 3 – TEMPO DE UTILIZAÇÃO DO DETECTOR**

Este trabalho demandou 58 dias de medidas, conforme descrito na tabela abaixo;

<b>Medidas</b>	<b>Tempo de medida (em dias)</b>
17 amostras do Perfil	17
Reprodutibilidade	20
Variabilidade amostra 202	8
Variabilidade amostras 206 e 207	8
Fundo (Branco)	3
Padrões IAEA-385 e IAEA-237	2
<b>Total</b>	<b>58</b>