

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE MINAS GERAIS
DEPARTAMENTO DE ENGENHARIA NUCLEAR**

DANILO CHAGAS VASCONCELOS

**ESTUDO DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM AREIAS DE PRAIAS DO
EXTREMO SUL DA BAHIA UTILIZANDO MÉTODOS DE ANÁLISES
NUCLEARES**

BELO HORIZONTE

2010

DANILO CHAGAS VASCONCELOS

**ESTUDO DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM AREIAS DE PRAIAS DO
EXTREMO SUL DA BAHIA UTILIZANDO MÉTODOS DE ANÁLISES
NUCLEARES**

Tese apresentada ao Programa de Pós-graduação em
Ciências e Técnicas Nucleares da Universidade Federal de
Minas Gerais como requisito parcial para obtenção do
Grau de Doutor em Ciências e Técnicas Nucleares
Área de Concentração: Ciências das Radiações
Orientadora: Prof^a. Dra. Cláudia Pereira Bezerra Lima
Co-Orientador: Prof. Dr. Arno Heeren de Oliveira

BELO HORIZONTE

2010

DEDICO ESTE TRABALHO AOS MEUS PAIS:
JUDITE CHAGAS DE OLIVEIRA E JOSÉ VASCONCELOS DE OLIVEIRA.

AGRADECIMENTOS

Aos professores:

Prof. Dr^a. Cláudia Pereira Bezerra Lima;

Prof. Dr. Arno Heeren de Oliveira;

Prof. Dr^a. Maria Isabel Guimarães Severo;

Prof. Dr^a. Maria Auxiliadora Fortini;

Prof. Dr^a. Ângela Fortini.

Aos amigos que contribuíram ativamente neste trabalho:

Bruno Teixeira Guerra, Maurício Gilberti, Fabiano Cardoso, Sâmia Brandão, Janine Toledo, Kellen Verena, Patrícia Amélia de Lima Reis, Mário Roberto Braga, Valéria Cuccia, Cláudia Pereira Bezerra Lima, Maria Líbia Pereira Bezerra Lima.

Colegas e amigos:

Leandro Almir Diniz Souza e sua família; Nayara Severo; Luciene das Graças Motta; Graiciany de Paula Barros, Bruna Carolina Gomes Cortez; Sheila Cortez; Carlos Cortez, Ana Cácia Freire, Balbino Lino, Luiza Fernanda, Jane Lima.

Familiares:

Judite Chagas de Oliveira; José Vasconcelos de Oliveira; Marta Sulamita Chagas de Oliveira; Wilson Chagas Neto; Micheline Chagas de Oliveira; Luciano Chagas de Oliveira; Milena Chagas de Oliveira; Aline Spinelli Chagas de Oliveira; Saulo Chagas Vasconcelos.

Colaboradores:

M.Sc. Zildete Rocha, M.Sc. Talita Oliveira e Dr^a Maria Ângela de Barros Correia Menezes.

RESUMO

DETERMINAÇÃO DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM AREIAS DE PRAIAS DO EXTREMO SUL DA BAHIA UTILIZANDO TÉCNICAS DE MEDIDAS NUCLEARES

A radioatividade natural foi determinada nas areias de praias do extremo sul da Bahia em 7 pontos de coletas: Arraial D'Ajuda, Porto Seguro, Trancoso, Caraíva, Cumuruxatiba, Prado, alcobaça e Caravelas. Foram utilizadas, para tanto, as técnicas de ativação neutrônica (através de método relativo para quantificar o ^{232}Th e o método de análise por nêutrons retardados de fissão, para a determinação de urânio total) e espectrometria gama (na determinação dos isótopos: ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{228}Ac e ^{40}K). Os resultados mostraram que os locais com maiores atividades específicas do ^{238}U foram Alcobaça e Cumuruxatiba cujo os valores estão acima da média mundial. Os valores das atividades específicas do ^{226}Ra e ^{232}Th em Cumuruxatiba, Trancoso e Alcobaça também estão acima da média mundial, enquanto que para o ^{40}K esse valor esteve acima somente em Cumuruxatiba. Foram, também, medidas: a taxa de dose absorvida no ar, a dose efetiva anual e os índices de riscos da radiação gama. A dose *outdoor* absorvida no ar a 1 m variaram de 21 a 14.450 nGy h⁻¹ com valor médio de 1.792 nGy h⁻¹. O maior valor encontrado ao longo das praias estudadas foi em Cumuruxatiba com média de 15.100 nGy h⁻¹. A dose efetiva anual variou entre 0,025 e 18,50 mSv a⁻¹, com uma média de 2,162 mSv a⁻¹. Foram observados valores médios maiores do que a média mundial em Arraial D'Ajuda, Trancoso, Alcobaça, Caraíva e Cumuruxatiba. O valor médio da taxa de dose efetiva anual *outdoor* em Cumuruxatiba (17,72 mSv a⁻¹) a classifica como uma região de alto *background* (HBRA). As medidas dos índices de riscos da radiação gama consideraram que as areias de Caraíva, Alcobaça e Cumuruxatiba não são seguras para serem utilizadas como material de construção. Esse trabalho também teve como objetivo utilizar o código MCNP-5, baseado no método Monte Carlo, para comparar a curva de calibração em eficiência experimental com a simulação obtida pelo código. O resultado experimental mostrou concordância com o teórico, exceto para baixas energias, pois não foi considerado o volume ativo do cristal de germânio do detector estudado.

Palavras-chave: Ativação Neutrônica, Espectrometria Gama, HPG, MCNP-5 e Radioatividade Natural

ABSTRACT

NATURAL RADIOACTIVITY IN BRAZIL BEACH SAND FROM EXTREME SOUTH OF BAHIA USING NUCLEAR TECHNIQUES OF MEASUREMENTS

The natural radioactivity was determined in the beach's sands from extreme south of Bahia in seven locations: Arraial D'Ajuda, Porto Seguro, Trancoso, Caraíva, Cumuruxatiba, Prado and Caravelas. Neutron Activation Techniques Analysis (Instrumental Neutron Activation Analyses was used for determination of ^{232}Th and Delayed Neutrons Analysis for determination of uranium) and Gamma Spectrometry Analysis (for determination of the ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{228}Ac and ^{40}K). The mean specific activity for ^{238}U was higher in Cumuruxatiba and Alcobaça than in others locations studied. The values of the specific activities of ^{226}Ra and ^{232}Th in Cumuruxatiba, Trancoso and Alcobaça are above average worldwide, the mean of ^{40}K was higher in Cumuruxatiba than in others locations. The rate absorbed dose in air, annual effective dose and gamma ray radiation hazard also were measured. The dose absorbed in the outdoor air at 1 m ranged from 21 to 14,450 nGy h⁻¹ with value average of 1792 nGy h⁻¹. The highest average value was found in Cumuruxatiba (15,100 nGy h⁻¹). The effective dose annual ranged between 0.025 and 18.50 mSv a⁻¹, with average of 2.162 mSv a⁻¹. Values in Arraial D'Ajuda, Trancoso, Alcobaça, Caraíva and Cumuruxatiba were greater than global average (0,07 mSv a⁻¹). The mean value of annual effective dose rate outdoor in Cumuruxatiba (17.72 mSv a⁻¹) is considered as a region with high background (HBRA). Values of gamma ray radiation hazard considered the sands from Caraíva, Alcobaça and Cumuruxatiba unsafe for use as building material. In this work use the MCNP-5 code, based on the method Monte Carlo, to compare the experimental absolute efficiency curve obtained by the simulated absolute efficiency curve. The experimental data showed agreement with the simulated, however for the lower energies were disagreement, because the sensitive volume of the germanium crystal it is not considered.

Keywords: Neutron Activation, Gamma Spectrometry, HPGe, MCNP-5 e Natural Radioactivity

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 – Esquema do decaimento do ^{40}K (Modificado de Aramburu & Bisbal, 1994)	31
Figura 2 – Variação do conteúdo médio de K, eTh e eU para rochas ígneas intrusivas e extrusivas com aumento no conteúdo de sílica, modificado de Dickson & Scott (1997). .	32
Figura 3 – Vias terrestres da transferência de radionuclídeos e a dose no corpo – (Modificado de UNSCEAR, 2000)	31
Figura 4 – Esquema dos componentes da eletrônica utilizada	53
Figura 5 – Espectros esquemáticos onde são demonstrados como seria um com boa resolução e outro com má resolução (Knoll, 2000)	54
Figura 6 – Comportamento da Seção de choque microscópica de fissão do ^{235}U em função da energia do nêutron incidente. (Modificado de Knoll, 2000.)	62
Figura 7 – Mapa da região do extremo sul da Bahia mostrando os locais de estudo	67
Figura 8 – A imagem à esquerda mostra a praia de areia branca de Cumuruxatiba, um dos locais do estudo; a imagem à direita mostra o momento da realização da coleta.	68
Figura 9 - Blindagem e sala blindada do detector (Cuccia, 2006)	70
Figura 10 – Curva de calibração em energia do detector de HPGe.....	71
Figura 11 – Representação esquemática do frasco Marinelli Beaker colocado sobre o detector HPGe.	72
Figura 12 – Comparação entre os espectros: a) Uma amostra aleatória;	74
b) Radiação de fundo do sistema (Modificado de Akram et al, 2006)	74
Figura 13 – Espectro gama mostrando o fotopico do ^{233}Pa de uma amostra irradiada com nêutrons térmicos para determinação da concentração de ^{232}Th	75
Figura 14 – Esquema da geometria, definida no MCNP-5, do Marinelli Beaker sobre o detector de HPGe e os materiais correspondentes.....	78
Figura 15 – Aspecto em seção transversal do detector de germânio, (modificado de Canberra, 1999).....	79
Figura 16 – Curvas de eficiência do detector de HPGe experimental e teórica	84
Figura 17 – Curvas de eficiência do detector de HPGe experimental e teórica com a exclusão do ponto de baixa energia (81 keV).....	85
Figura 18 – Comparação entre as relações das eficiências experimental e os valores ajustados para a faixa de energia investigada.....	87
Figura 19 – Dados de cada ponto de coleta referentes a Equação 12 obtida conforme sugere a posição regulatória 3.01/001 da CNEN	93
Figura 20 – Dose efetiva anual (mSv a^{-1}) nos locais em estudo; em escala logarítmica.....	95
Figura 21 – Correlação entre as atividades específicas para (a) ^{232}Th e ^{228}Ac e	100

(b) entre ^{238}U e ^{226}Ra	100
Figura 22 – Correlação entre as atividades específicas para (a) ^{228}Ac e ^{212}Pb e.....	101
(b) entre ^{214}Pb e ^{214}Bi	101
Figura 23 – Correlação entre ^{232}Th e ^{226}Ra nas areias de praia dos diferentes locais em estudo –	
(a) correlação das amostras de baixa atividade e (b) correlação das amostras de alta	
atividade	103
Figura 24 – Correlação entre as atividades específicas do ^{232}Th e ^{238}U nas amostras de areias –	
(a) correlação das amostras de alta atividade e (b) correlação das amostras de baixa	
atividade	104
Figura 25 – Correlação entre ^{40}K e os radionuclídeos ^{232}Th e ^{238}U nas areias de praia dos	
diferentes locais em estudo.....	105

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 – Áreas de Maior Background no Mundo (Modificado de UNSCEAR, 2000).....	22
Tabela 2 – Reservas mundiais de monazitas estimadas (Mezrahi, 2005)	24
Tabela 3 – Características químicas da monazita (Mezrahi, 2005).....	24
Tabela 4 – Reservas medidas e estimadas de monazita no Brasil (Mezrahi, 2005).....	25
Tabela 5 – Lista dos componentes da série radiativa natural do ^{235}U , com o modo de decaimento, meia-vida e energia da partícula emitida (Aramburu e bisbal, 1994)	27
Tabela 6 - Lista dos componentes da série radiativa natural do ^{238}U , com o modo de decaimento, meia-vida, e energia da partícula emitida (Aramburu e bisbal, 1994).....	28
Tabela 7 – Lista dos componentes da série radioativa natural do ^{232}Th , com o modo de decaimento, meia-vida, e energia da partícula emitida (Aramburu e bisbal, 1994)	30
Tabela 8 - Fatores de peso para tecido e órgãos e para os diferentes tipos de radiação e suas faixas de energia, w_T e w_R (ICRP, 1991)	41
Tabela 9 – Taxa de dose efetiva outdoor para um adulto por unidade de concentração de radionuclídeos naturais no solo (UNSCEAR, 2000)	43
Tabela 10 - Limites de dose devida a radiação natural em alguns países da Europa (Lopes, <i>et al</i> , 2004).....	49
Tabela 11 – Dimensões do detector HPGe fornecida pelo fabricante (Canberra, 1999).....	78
Tabela 12 – Valores do FWHM para cada energia e seu pico centróide	83
Tabela 13 – Coeficientes utilizados na opção GEB do INPUT.....	84
Tabela 14 – Coeficientes de ajuste da função da eficiência semi-empírica obtidos para faixas de energias.....	86
Tabela 15 – Valores das eficiências calculadas experimentalmente, por MCNP-5 e ajustadas para o detector de HPGe utilizado na pesquisa	87
Tabela 16 - Limites de detecção (LD) e de quantificação (LQ) para cada radionuclídeo e suas respectivas técnicas.	88
Tabela 17 – Valores das atividades específicas do ^{238}U e ^{232}Th (Bq kg^{-1}) obtidas nas amostras superficiais das areias de praias, usando os métodos ANIR e ANRF.	89
Tabela 18 – Atividades específicas (média \pm SD), em Bq kg^{-1} , dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ac e ^{40}K nos locais de estudo.....	91
Tabela 19 – Índices de riscos da radiação gama nas amostras de areia coletadas no extremo sul da Bahia (mínimo-máximo)média.....	92
Tabela 20 – Valores relativos e absolutos da taxa de dose absorvida no ar a 1m no locais em estudo para cada radionuclídeo analisado.....	94

Tabela 21 - Sumário das atividades específicas, índices de riscos da radiação gama e taxas de dose dos radioisótopos naturais em amostras de solos e areias de algumas regiões do mundo.....	97
Tabela 22 – Relações entre os radionuclídeos nos locais em estudo e em outros locais no mundo	98

LISTA DE SIGLAS

AAN - Análise por Ativação Neutrônica Instrumental
ANRF - Análise por Nêutrons Retardados de Fissão
BG – Background
CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear
CDTN – Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
DAP - Distribuição da Altura do Pulso
DNA – Desoxy-ribo-Nucleic Acid
EG - Espectrometria Gama
EPC- Equilíbrio de Partículas Carregadas
FWHM - Full Width at Half Maximum
GEB – Gaussian Energy Broadening
GM – Geiger Muller
HBRA – Áreas de Alto *Background* Natural
HPGe – Detector de Germânio Hiperpuro
ICRP- International Commission on Radiological Protection
Kerma - Kinetic Energy Released in Material
LD – Limite de Detecção
LQ – Limite de Quantificação
MCNP-5 – Monte Carlo Neutron Particle Code-5
OECD – Organisation for Economic Cooperation and Development
ROI – Region of Interests
UNSCEAR – United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation

SUMÁRIO

AGRADECIMENTOS	4
RESUMO	5
ABSTRACT	6
LISTA DE FIGURAS	7
LISTA DE TABELAS	9
LISTA DE SIGLAS	11
Capítulo 1 – Introdução	15
1.1 Contextualização do Problema	15
1.2 Objetivos do Trabalho	16
1.2.1 <i>Objetivo geral</i>	16
1.2.2 <i>Objetivos específicos</i>	16
1.4 Relevância do Trabalho	18
1.5 Estrutura do Trabalho	19
Capítulo 2 – Revisão Bibliográfica	20
2.1 Radioatividade natural	20
2.2 Areia Monazítica	23
2.3 Radionuclídeos Naturais.....	25
2.3.1 <i>Urânio</i>	25
2.3.2 <i>Tório</i>	28
2.3.3 <i>Potássio</i>	30
2.3.4 <i>Rádio</i>	31
2.4 Distribuição de K, U e Th em solos	32
2.5 Radionuclídeos e o corpo humano.....	33
2.6 Equilíbrio Radioativo	35
2.7 Grandezas Dosimétricas	37
2.8 Métodos para estimar as exposições.....	42
2.9 Exposição Externa <i>Indoor</i>	43
2.10 Exposição Externa <i>Outdoor</i>	43
	12

2.11	Índices de Risco da Radiação Gama.....	46
2.12	Radioproteção e Regulamentação	47
2.13	Espectrometria Gama	50
2.13.1	<i>Detecção Gama</i>	51
2.13.1	<i>Resolução</i>	53
2.13.2	<i>Eficiência de detecção</i>	55
2.14	Análise por Ativação Neutrônica	60
2.15	Análise de Nêutrons Retardados de Fissão (ANRF)	61
2.16	O Código Monte Carlo Neutron Particle Code (MCNP)	63
CAPÍTULO 3 – MATERIAIS E MÉTODOS.....		67
3.1	Área de estudo	67
3.2	Coleta de amostras.....	68
3.3	Métodos de Análise	69
3.3.1	<i>Espectrometria Gama</i>	69
3.3.2.1	<i>Determinação de ²³²Th</i>	74
3.3.2.2	<i>Determinação do ²³⁸U</i>	75
3.5	Índices de Risco da Radiação Gama.....	80
3.6	Cálculo de doses	82
CAPÍTULO 4 – RESULTADOS E DISCUSSÕES		83
4.1	Eficiência obtida utilizando o código MCNP-5	83
4.2	Limites de Detecção e Quantificação	88
4.3	Determinação das concentrações de Urânio e Tório	88
4.4	Determinação das Atividades do ²²⁶ Ra, ²²⁸ Ac e ⁴⁰ K.....	90
4.5	Cálculos das doses, dos índices de risco da radiação gama e da Posição Regulatória da CNEN.....	91
4.6	Sumário de comparações	95
4.7	Considerações sobre o Equilíbrio Radioativo nas Amostras.....	98
CAPÍTULO 5 – CONCLUSÕES E PERSPECTIVAS FUTURAS		106
5.1	CONCLUSÕES	106
5.2	PERSPECTIVAS FUTURAS	107
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS		109

ANEXO 1.....	121
INPUT	121
ANEXO 2.....	124
TRABALHOS GERADOS NESTA TESE.....	124

Capítulo 1 – Introdução

1.1 Contextualização do Problema

A todo instante os seres humanos são expostos à radiação ionizante natural decorrente de radionuclídeos presentes não só no solo, como também nos alimentos, na água e em outros materiais. Esta radiação é oriunda de isótopos radioativos das séries radioativas naturais do tório (^{232}Th) e urânio (^{238}U e ^{235}U), como também do radioisótopo do potássio (^{40}K), que são os maiores contribuintes da radiação natural terrestre (MEHRA, 2009). A radiação gama emitida por esses radioisótopos naturais representa a principal fonte externa de radiação do corpo humano (LU & ZHANG, 2006).

Os solos são uma das principais fontes de radiação natural e sua radioatividade depende essencialmente das condições geográficas e geológicas de cada região onde estão localizados. A presença de radionuclídeos naturais nesses solos contribuem significativamente para os níveis de dose ambiental que o ser humano recebe. Sendo assim, é importante ter o conhecimento da distribuição, composição e do *background* destes solos (VEIGA *et al.*, 2006). Nesse sentido, o comportamento do rádio, em particular do isótopo ^{226}Ra e do seu produto de decaimento, o ^{222}Rn , desperta um interesse especial, uma vez que são responsáveis por cerca de 50% da dose de exposição humana à radiação (NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION, 1987 *apud* GREEMAN *et al.*, 1999).

O estudo da utilização de areias, ricas em radionuclídeos naturais, na construção civil é também um critério de interesse científico e uma das preocupações de órgãos mundiais responsáveis por proteção e medidas radiológicas (AHMED, N.K., 2005; HIGGY, R.H., 2000). Esse problema é agravado devido ao fato das pessoas passarem 80% de seus tempos em ambientes *indoor* (UNSCEAR, 2000), o que faz com que seja necessário um controle radiológico em areia ou em qualquer outro material que contenha quantidades significativas desses radionuclídeos.

No Brasil não é comum avaliar quaisquer materiais ou áreas que contêm radionuclídeos classificados como de ocorrência natural, denominados *Naturally Occurring Radioactive Materials* - NORM. Na Comissão Nacional de Energia Nuclear-CNEN, órgão fiscalizador do território nacional, há um critério de exclusão do requisito de proteção radiológica da Posição Regulatória 3.01/001 que diz não ser da responsabilidade da CNEN a exposição devido às concentrações não alteradas de radionuclídeos naturais existentes em praticamente todos os materiais ou matérias primas. Dessa forma, não há responsável para minimizar, por meio de ações de proteção radiológica, a exposição pública nas áreas de alto *background* (HBRA – *High Background Radiation Areas*) no Brasil, seja essa exposição proveniente de areias monazíticas, minérios etc.

O interesse em medir as concentrações dos principais radioisótopos naturais que mais contribuem com a exposição externa *outdoor*, da região do extremo sul da Bahia, deve-se ao grande crescimento e interesse dos pesquisadores para se estabelecer níveis de referência da radioatividade natural em todo mundo e, também, na avaliação dessas exposições nos indivíduos do público.

1.2 Objetivos do Trabalho

1.2.1 Objetivo geral

1 – Estabelecer níveis de referência do *background* das praias do extremo sul da Bahia;

1.2.2 Objetivos específicos

1 – Medir as atividades específicas dos radionuclídeos das séries do ^{238}U e ^{232}Th e do ^{40}K nas amostras coletadas pelas técnicas de ativação neutrônica (métodos instrumental relativo e por análise de nêutrons retardados de fissão) e espectrometria gama;

2 – Calcular a taxa de dose absorvida no ar, a taxa de dose efetiva anual e os índices de riscos da radiação gama a partir das atividades específicas dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K ;

3 – Estudar o equilíbrio radioativo das séries do ^{238}U e ^{232}Th ;

- 4 – Comparar as características radioquímicas e dosimétricas da Região estudada com outros locais;
- 5 – Construir as curvas de calibração em eficiência experimental e teórica do detector de germânio hiper-puro utilizado nas medidas analíticas
- 6 – Utilizar o código MCNP-5, baseado no método Monte Carlo, na simulação da curva de calibração em eficiência do detector de HPGe utilizado nas análises de ^{226}Ra e ^{40}K .

1.3 Justificativa

Muitas das áreas de alto *background* natural no Brasil já foram estudadas como, por exemplo, Meiapê e Guarapari na costa capixaba (FUJINAMI, 1999; MALANCA, 1995) e Morro do Ferro no estado de Minas Gerais (PASCHOA, 2000). Contudo, pouco se sabe sobre a radioatividade do extremo sul do estado da Bahia ou de estudos que mostrem se a praia de Cumuruxatiba, por conter cerca de 4.500 t de areia monazítica (MEZRAHI, 2005), é uma área de alto *background*. Dessa forma, torna-se necessária a realização de um estudo nessa região, por ser uma pesquisa pioneira e para que finalmente sejam estabelecidos níveis de referência em uma região que possui uma grande possibilidade de se destacar como uma HBRA. Pesquisas desenvolvidas para esse fim são importantes para avaliar os possíveis riscos radiológicos à saúde humana disponibilizando dados para subsidiar padrões e diretrizes no que diz respeito à exposição pública.

Para classificar uma região como uma área de alto *background* natural é necessário que seja realizado um estudo dosimétrico e, ou, radiométrico no local, executando medidas que podem ser diretas ou indiretas e requerem uma metodologia validada e precisa com a utilização de detectores de radiação devidamente calibrados. O uso do Monte Carlo Neutron Particle Code - 5 (MCNP-5) na simulação da determinação da curva de calibração em eficiência de um detector de HPGe é uma ferramenta auxiliar nas medidas, pois além de otimizar a calibração essa simulação ajuda a reproduzir as análises experimentais (RÓDENAS, 2007).

De modo mais geral, a grande motivação para este estudo é a introdução da simulação realizada utilizando o código MCNP-5 como uma abordagem analítica para comparações com os dados experimentais por espectrometria gama do laboratório de

Trítio do Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear - CDTN/CNEN e estabelecer os níveis de referência de uma região pouco estudada, porém com características geoquímicas peculiares para enquadrar-se como uma Área de Alto *Background* Natural.

1.4 Relevância do Trabalho

De acordo com Ramli (1997), o maior interesse no estudo da radiação natural é a necessidade de estabelecer os níveis de referência, especialmente nos locais onde a emissão da radioatividade no ambiente é alta. Existe, também, um amplo interesse mundial em identificar novas áreas com alto *background*. Algumas regiões no mundo são conhecidas por serem áreas de alto *background* natural, onde grandes concentrações de radionuclídeos, seja proveniente das séries do ^{232}Th ou ^{235}U e ^{238}U , causam um nível elevado da radiação (Veiga, 2006). Muitos autores já estudaram areias de praias e sedimentos com essas finalidades (MOHANTY *et al.*, 2004; VEIGA *et al.*, 2006; ALENCAR & FREITAS, 2005; LU & ZHANG, 2006; LU *et al.*, 2008 e GONZÁLEZ-CHORNET & GONZÁLEZ-LABAJO, 2004).

No Brasil, as maiores reservas de urânio e tório são a monazita, zirconita e columbita/tantalita. A monazita é o mais importante mineral de terras-raras, entretanto há também concentrações significativas de tório e urânio que variam de 0 a 32%. A principal fonte produtora de monazita no Brasil é a areia monazítica presente em algumas praias ao longo da costa, incluindo as praias do extremo sul baiano. O estudo dosimétrico e radioquímico dessas areias é de grande interesse científico e econômico devido à monazita ser classificada como um mineral de interesse para indústria nuclear. Sendo assim, torna-se clara a necessidade de pesquisas em novas HBRAs, pois o conhecimento da presença de radionuclídeos pode ajudar a minimizar os riscos potenciais de longa duração (radionuclídeos de meias-vidas longas) e, ou, evitar uma exposição a curto prazo (radionuclídeos de meias-vidas curtas), além de ser um parâmetro para novas pesquisas na extração de minérios de urânio e tório (MEZHARI, 2005).

1.5 Estrutura do Trabalho

Este trabalho foi dividido em 5 capítulos, e cada um foi composto da seguinte forma:

1. no Capítulo 1 foram descritos: a contextualização do problema, os objetivos do trabalho, a justificativa e a relevância do trabalho;
2. no Capítulo 2 foi apresentado a revisão bibliográfica sobre radioatividade natural, areia monazítica, radionuclídeos naturais, assim como sua distribuição no solo; dose, equilíbrio radioativo, radioproteção e regulamentação, as técnicas de medidas usadas no trabalho: espectrometria gama, análise por ativação neutrônica instrumental e análise de nêutrons retardados de fissão e por fim sobre o código MCNP.
3. no Capítulo 3 foram descritos os materiais e métodos onde são apresentados os locais em estudo, metodologia de coleta, técnicas de medidas e como foram calculados os índices de risco da radiação gama e as doses.
4. no Capítulo 4 foram apresentados os resultados e discussões, contendo os valores dos limites de detecção e quantificação, das concentrações dos radionuclídeos naturais, das doses e índices calculados, assim como as comparações dos valores da pesquisa com aqueles de outros estudos. Foram, também, apresentadas algumas considerações sobre equilíbrio radioativos e os resultados da simulação usando MCNP-5.
5. no Capítulo 5 foram apresentadas as conclusões gerais da pesquisa e as perspectivas futuras.
6. por fim, foram apresentados 2 anexos o primeiro formado pela entrada padrão usada no código MCNP-5, e o segundo anexo formado pelos trabalhos apresentados em congresso e submetidos a revista indexada, todos eles relacionados com o trabalho desenvolvido nesta tese.

Capítulo 2 – Revisão Bibliográfica

2.1 Radioatividade natural

Segundo Aramburu e Bisbal, 1994, as fontes de radiação naturais são aquelas que não foram originadas por ações antropogênicas. A radioatividade natural provém dos radionuclídeos presentes na crosta terrestre (radionuclídeos primordiais) ou dos radionuclídeos produzidos pela interação dos raios cósmicos com a atmosfera (radionuclídeos cosmogênicos).

Os radionuclídeos primordiais consistem em três séries que são mais encontradas na natureza são: a série do ^{238}U (Abundância natural de 99,27%), a do ^{235}U (Abundância natural de 0,72%) e a do ^{232}Th (Abundância natural de 100%) e também do ^{40}K (0,01%). Cada uma dessas séries é iniciada a partir de um isótopo do urânio ou tório, tendo uma meia-vida longa comparada à idade do sistema solar (~ 4,5 bilhões de anos) e termina em um isótopo estável do chumbo e no caso do ^{40}K termina em um isótopo estável de cálcio. Destas séries, freqüentemente a do ^{235}U é a menos detectada devido à pequena porcentagem do isótopo na natureza. O decaimento dos núcleos destas séries ocorre preferencialmente por emissões de partículas alfa e/ou beta. Essas séries serão discutidas mais adiante neste capítulo.

Os radionuclídeos provenientes das séries do urânio e do tório contribuem com cerca de 70% da dose anual por pessoa devido à exposição à radiação natural. Entretanto, a contribuição da série do ^{235}U na dose total é muito baixa, dessa maneira essa série não é levada em consideração na determinação de dose (GONZÁLEZ-CHORNET E GONZÁLES-LABAJO, 2004).

Durante as últimas décadas, surgiu um interesse crescente nos estudos epidemiológicos relativos aos efeitos da exposição à radiação natural na saúde das populações, principalmente as que vivem em ambientes cuja radiação ambiental seja elevada. Esses estudos incluem pesquisas referentes ao radônio residencial realizados em vários países e também referentes a elevada exposição à radiação de fundo natural presente em algumas partes do mundo, conhecidas como áreas de alto background (HBRAs). Estes estudos se destinam a ajudar a encontrar as estimativas de um coeficiente de risco da

radiação em doses baixas e de taxas de dose, que de outra forma estão sendo obtidos por extrapolação a partir de estudos epidemiológicos existentes em grupos que foram expostos a uma elevada radiação, como por exemplo, os japoneses sobreviventes dos ataques a Hiroshima e Nagasaki (ICRP, 1991) e minas de urânio (CHOUGAONKAR *et al.*, 2004).

Uma região de alto *background* é definida como uma área ou um complexo de construções onde a radiação natural no solo, ar (*outdoor* e *indoor*), água, alimentos, etc. levam a uma elevada exposição, seja ela interna ou externa, que resulta em uma dose efetiva anual para o público acima dos níveis estabelecidos (HENDRY, *et al.*, 2009). A taxa de dose efetiva anual é classificada em 4 níveis: baixo que é até 5,0 mSv a⁻¹ (ou seja, duas vezes o valor da média mundial que é de 2,4 mSv a⁻¹ segundo a UNSCEAR, 2000); médio que é o valor entre 5,0 a 20 mSv a⁻¹; alto entre 20 a 50 mSv a⁻¹ e muito alto que equivale a valor superior a 50 mSv a⁻¹ (HENDRY, *et al.*, 2009). Este sistema de classificação considera os limites de dose estabelecidos pelo ICRP 60 e o *International Basic Safety Standards* (HENDRY, 2009; IBSS, 1996).

Dois regiões no Brasil são bem conhecidas pelo seu alto *background*: Morro do Ferro no estado de Minas Gerais e a região de areia monazítica ao longo da costa do Atlântico (PENNA-FRANCA *et al.*, 1965; PASCHOA, 2000). Vários estudos já foram realizados em alguns lugares com areias monazíticas no mundo (UNSCEAR, 2000); como em Kerala e Tamilnadu (RADHAKRISHNA *et al.*, 1993), em Kalpakkam (KANNAN *et al.*, 2002) e um recente trabalho foi realizado na costa de Orissa, também na Índia (MOHANTY *et al.*, 2004). No Brasil muitos estudos já foram realizados em Guarapari, na costa capixaba (PENNA-FRANCA *et al.*, 1965; SACHETT, 2002) e na Ilha Grande, estado do Rio de Janeiro (FREITAS & ALENCAR, 2004). Entretanto, há poucos estudos na costa do extremo sul do estado da Bahia (VEIGA *et al.*, 2006), nada foi encontrado sobre a região de Cumuruxatiba, onde há uma das maiores reservas de areia monazítica no Brasil. A Tabela 1 mostra as áreas de maior *background* estudadas no mundo.

Tabela 1 – Áreas de Maior Background no Mundo (Modificado de UNSCEAR, 2000)

País	Local	Características do local	População	Taxa de dose absorvida no ar (nGy h ⁻¹)*
Brasil	Guarapari;	Areia Monazítica; Rochas vulcânicas	73 000;	90-170(ruas)
	Minas Gerais e Goiás (Poços de Caldas e Araxá)		350	90-90 000(praias)
China	Yangjiang; Quangdong	Partículas monazíticas	80 000	370 (média)
Egito	Margem do Nilo	Areia Monazítica		20-400
França	Região Central; Sudeste	Áreas de granito, xisto e arenito; Minério de urânio	7 000 000	20-400
				10- 10 000
Índia	Kerala e Madras; Margem do ganges	Areias Monazíticas	100 000	200-4 000
				1 800 (média) 260-440
Irã	Ramsar; Mahallat	Nascentes de rios	2 000	70-17 000
				800-4 000
Itália	Lazio;	Solo vulcânico	5 100 000	180 (média)
	Campania;		5 600 000	200 (média)
	Orvieto;		21 000	560 (média)
	Sul de Toscana		100 000	150-200
Ilha Niue	Pacífico	Solo vulcânico	4 500	1100 (máximo)
Suíça	Tessin;	Gneiss;	300 000	100-200
	Alpes;	Verucano;		
	Jura	²²⁶ Ra em solos		

* radiação solar incluída

No trabalho de VEIGA *et al.* (2006) foi medida a radiação natural em areias de praias brasileiras, inclusive no estado da Bahia, e concluiu-se que na maioria das praias foi encontrada uma dose anual de 0,07 mSv a⁻¹ e uma atividade equivalente do rádio (*radium equivalent activity*) de 82 Bq kg⁻¹. Entretanto, em algumas praias específicas esses valores excedem o limite de 2,4 mSv a⁻¹ recomendado pela OECD – *Organisation for Economic Cooperation and Development* –. Segundo o autor, em Porto Seguro, na Bahia esse valor excede 17 vezes o limite. Além do que este aumento no *background* de algumas praias pode estar correlacionado com a presença de depósitos minerais na areia.

2.2 Areia Monazítica

As areias de praias são depósitos minerais formados a partir da erosão de rochas. Os constituintes minerais das rochas são alguns radionuclídeos naturais das séries do U e Th e do K, que contribuem para a exposição à radiação na Terra (VEIGA, 2006). Além disso, essas areias podem conter minerais como monazita e zirconita. Segundo HASSAN *et al.*, 1997, a monazita é um dos mais importantes materiais geológicos, devido a presença dos elementos urânio e tório que são elementos físséis usados na indústria nuclear. Em meados da década de 40 houve grande interesse da indústria nuclear na extração de U e Th, pois a monazita pode conter, em média, mais de 5% de ThO₂ (em muitos minerais comerciais o teor está entre 6 e 12%, mas pode atingir até 35%) e algumas centenas de ppm de urânio, elementos físséis e fissionáveis, que são usados como combustível nuclear. A extração de Th em monazíticas é muito cara, o que torna esse processo inviável. Hoje a extração de Terras Raras é mais viável do que o Th e U na monazita devido sua alta concentração (MEZRAHI, 2005).

Os materiais que contêm radionuclídeos naturais das séries do ²³⁵U, ²³⁸U e ²³²Th, além do ⁴⁰K, podem ser classificados como de ocorrência natural, denominados NORM, *Naturally Occurring Radioactive Materials*, ou tecnologicamente aumentados, denominados TENORM, *Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Materials*, dependendo se houve ou não um processamento industrial que levou ao aumento da concentração de radionuclídeos no material e ao aumento do nível de radioatividade (BAHARI, et al, 2007). A areia monazítica se enquadra no grupo de materiais classificados como NORM, e seu uso para quaisquer fins pode aumentar a exposição da população.

Em certos locais do mundo, ocorrem níveis elevados de tório no solo, causando um aumento da exposição à radiação natural. Isto inclui área de areia monazítica presente na costa brasileira. A Tabela 2 mostra as reservas mundiais de monazitas estimadas em toneladas. A monazita é um mineral raro e insolúvel em água, rico em fosfato, cério, lantânio e tório. A Tabela 3 mostra as características químicas da monazita.

Tabela 2 – Reservas mundiais de monazitas estimadas (MEZRAHI, 2005)

País	Monazita (t)
Índia	5.000.000
Estados Unidos	1.100.000
Austrália	800.000
URSS (antiga)	500.000
Brasil	300.000
Emirados Árabes	200.000
Madagascar	100.000
Coréia do Sul	90.000
Tailândia	25.000
Malásia	18.000
África do Sul	15.000
Ceilão	10.000
Total	8.158.000

Tabela 3 – Características químicas da monazita (MEZRAHI, 2005)

Componentes	Teor (%)
Tr ₂ O ₃	62
ThO ₂	6
U ₃ O ₈	0,3
P ₂ O ₅	28
SiO ₂	0,3
ZrO ₂	0,5
TiO ₂	0,5
Fe ₂ O ₂	0,5
Al ₂ O ₃	0,3
CaO	0,8
PbO	0,2
Insolúveis	9
Componentes	Teor (Bq g ⁻¹)
²²⁶ Ra	31
²²⁸ Ra	212
²¹⁰ Pb	31

A taxa de dose de um ambiente com areia monazítica varia de acordo com a concentração dos radionuclídeos naturais ²³⁸U, ²³²Th e seus filhos, além do ⁴⁰K presente

em sua composição. Em certas praias brasileiras há áreas bem conhecidas pelos seus altos *backgrounds*, que atingem cerca de $14,400 \text{ nGy}^{-1}$ de dose absorvida no ar a 1,0 m (FREITAS & ALENCAR, 2004). A Tabela 4 mostra as reservas medidas e estimadas de monazita no Brasil.

Tabela 4 – Reservas medidas e estimadas de monazita no Brasil (MEZRAHI, 2005)

Localidade	Reserva Medida (t)
Rio de Janeiro	
Tipiti	6.000
Manguinhos	1.670
Espírito Santo	
Boa Vista	6.000
Guarapari	1.800
Norte de Vitória	6.000
Bahia	
Joacema	650
Cumuruxatiba	4.500
Total	26.620
	Reserva Estimada (t)
Rio Grande do Norte	
Estrela	650
Maranhão	
Barreirinhas	20.000
Total	20.650

2.3 Radionuclídeos Naturais

2.3.1 Urânio

O urânio é representado na tabela periódica com o símbolo U, pertence ao grupo dos actinídeos, possui número atômico 92 e peso atômico de 238,029. Sua estrutura cristalina é ortorrômbica. O U possui dois estados de valência U^{6+} e U^{4+} . A forma mais reduzida, U^{4+} , está geralmente contida em minerais insolúveis, ao contrário da forma mais oxidada, U^{6+} , onde em associação com complexos de CO_3^{-2} , SO_4^{-2} e PO_4^{-3} , pode

formar muitos minerais solúveis. A mobilidade do U^{6+} é modificada pela adsorção de óxidos de ferro hidratados, argilas e colóides.

O urânio pode estar presente nas rochas tanto em minerais à base de óxido como em silicatos, como por exemplo, uraninita e uranotorita; em minerais acessórios com U primário, como em monazita, xenotímio e zircão; como em quantidades traço em outros minerais; ou ao longo de camadas granuladas, possivelmente como óxidos ou silicatos. O urânio liberado pela quebra de minerais durante o intemperismo pode ser retido em óxidos de ferro autigênicos e argilominerais ou precipitado sob condições redutoras, formando depósitos de urânio em condições favoráveis.

O urânio natural compreende três isótopos: ^{238}U , ^{235}U e ^{234}U . Esses isótopos correspondem, respectivamente a 99,2743%, 0,72% e 0,0057% da abundância do elemento. Dentre os radionuclídeos descendentes do ^{238}U destaca-se o ^{226}Ra , que possui uma meia-vida de 1600 anos e que por emissão alfa forma o ^{222}Rn , cujo o tempo de meia-vida é de 3,82 dias. A série do ^{235}U e o ^{234}U não possuem uma contribuição significativa no estudo de dose, uma vez que não há descendentes de destaque. As Tabelas 5 e 6 mostram os componentes da série radiativa natural do ^{235}U e ^{238}U respectivamente.

Tabela 5 – Lista dos componentes da série radiativa natural do ^{235}U , com o modo de decaimento, meia-vida e energia da partícula emitida (ARAMBURU & BISBAL, 1994)

Elemento	Meia-vida	Desintegração	Energia (MeV)
^{235}U	$7,1 \times 10^8$ a	α	4,559
^{231}Th	25,6 h	β	0,300
^{231}Pa	$3,43 \times 10^4$ a	α	5,046
^{234}U	$2,5 \times 10^5$ a	α	4,768
^{230}Th	8×10^4	α	4,68
^{227}Ac	21,6 a	α	4,94
		β	0,046
^{227}Th	18,17 d	α	6,03
^{223}Fr	22 min	α	5,34
		β	1,2
^{223}Ra	11,68 d	α	5,864
^{219}At	0,9 min	α	6,39
		β	1,7
^{214}Em	3,92 s	α	6,81
^{215}Bi	8 min	α, β	2,25
^{215}Po	$1,83 \times 10^{-3}$	α	7,526
		β	0,72
^{211}Pb	36,1 min	β	1,39
^{215}At	10^{-4} s	α	8
^{211}Bi	2,15 min	α	6,75
		β	0,579
^{211}Po	0,52 s	α	7,442
^{207}Tl	4,79 min	β	1,44
^{207}Pb		estável	

Tabela 6 - Lista dos componentes da série radiativa natural do ^{238}U , com o modo de decaimento, meia-vida, e energia da partícula emitida (ARAMBURU & BISBAL, 1994)

Elemento	Meia-vida	Desintegração	Energia (Mev)
^{238}U	$4,5 \times 10^9$ a	α	4,2
^{234}Th	24,1 d	β	0,19
^{234}Pa	1,18 min	β	2,32
	6,7 h		1,13
^{234}U	$2,5 \times 10^5$ a	α	4,768
^{230}Th	8×10^4	α	4,68
^{226}Ra	1620 a	α	4,777
^{222}Rn	3,82 d	α	5,486
^{218}Po	3,05 min	α	5,998
^{214}Pb	26,8 min	β	0,7
^{218}At	1,5-2 s	α	6,63
^{214}Bi	19,7 min	α	5,51
		β	3,71
^{214}Po	$1,64 \times 10^{-4}$ s	α	7,683
^{210}Ti	1,32 min	β	1,9
^{210}Pb	19,4 a	β	0,017
^{210}Bi	5 d	β	1,155
^{210}Po	138,3 d	α	5,3
^{206}Tl	4,2 min	β	1,51
^{206}Pb		estável	

2.3.2 Tório

O tório é representado na tabela periódica com o símbolo Th, pertence ao grupo dos actínídeos, possui número atômico 90 e peso atômico de 232,0381. Sua estrutura cristalina é cúbica de face centrada. No estado puro, o tório tem aspecto prata, é estável no ar e o brilho se mantém por vários meses. É mole e dúctil, podendo ser trabalhado a frio. Se contaminado com o óxido, a cor muda gradualmente com a exposição ao ar, passando para cinza e preto. As propriedades físicas do tório são bastante influenciadas pelo teor de contaminação com o seu óxido. A estrutura cristalina muda de cúbica de face centrada para cúbica de corpo centrado a 1400°C . O óxido de tório tem ponto de fusão de 3300°C , o mais alto de todos os óxidos. Poucos elementos e compostos, como

tungstênio e carboneto de tântalo, têm pontos de fusão mais altos. É levemente atacado pela água e pouco atacado pela maioria dos ácidos, com exceção do clorídrico.

O tório ocorre em solução somente no estado de valência Th^{4+} , com evidências de valências menores no estado sólido. A solubilidade dos seus complexos é geralmente baixa, exceto em soluções ácidas. Entretanto, compostos orgânicos podem auxiliar na solubilidade do tório em condições de pH neutro. Segundo Dickson & Scott (1997) o tório pode estar presente em alanita, monazita, xenotímio e zircão a níveis maiores do que 1000 ppm ou em quantidades traço nos minerais principais. Os principais minerais de tório primário (monazita e zircônio) são estáveis durante o intemperismo e podem se acumular em minerais pesados em depósitos de areia. O tório liberado pela quebra de minerais durante o intemperismo pode ser retido em minerais hidratados ou oxidados a base de Fe ou Ti com argilas e é rapidamente adsorvido e transportado em argilas coloidais e óxidos de ferro, desta forma, possui um forte componente detrítica, especialmente em depósitos colúvio-aluvionares.

O tório é amplamente distribuído no ambiente e ocorre em baixa concentração na água, solo, rochas, plantas e animais, além de ser um litofílico típico e ter um comportamento geoquímico muito parecido com o dos elementos terras raras (especialmente o cério), zircônio, háfnio e urânio (HUIST, 1997).

O principal isótopo radioativo do tório é o ^{232}Th , com abundância de 100% do tório natural, uma vez que os demais isótopos possuem meias-vidas curtas em comparação à esse isótopo. Na série de decaimento radioativa é destacada a formação do ^{220}Rn , também chamado torônio, com meia-vida de 55 segundos, e do ^{228}Ac , com meia-vida de 6,13 h. A Tabela 7 mostra a série do ^{232}Th com as desintegrações, meia-vida e a energia máxima das partículas.

Tabela 7 – Lista dos componentes da série radioativa natural do ^{232}Th , com o modo de decaimento, meia-vida, e energia da partícula emitida (ARAMBURU & BISBAL, 1994)

Elemento	Meia-vida	Desintegração	Energia (MeV)
^{232}Th	$1,39 \times 10^{10}$ a	α	4,007
^{228}Ra	6,7 a	β	0,040
^{228}Ac	6,13 h	β	2,18
^{228}Th	1,91 a	α	5,423
^{224}Ra	3,64 d	α	5,681
^{220}Em	51,5 s	α	6,28
^{216}Po	0,16 s	α, β	6,774
^{212}Pb	10,6 h	β	0,580
^{216}At	3×10^{-4} s	α	7,79
^{212}Bi	60,5 min	α	6,086
		β	2,25
^{212}Po	3×10^{-7} s	α	8,78
^{208}Tl	3,1 min	β	1,79
^{208}Pb		estável	

2.3.3 Potássio

O potássio é representado na tabela periódica com o símbolo K, pertence ao grupo dos metais alcalinos, possui número atômico 19 e peso atômico de 39,0983. Sua estrutura cristalina é cúbica de corpo centrado. A maioria dos minerais de potássio é insolúvel e o metal é obtido com grande dificuldade. É um dos metais mais reativos e eletropositivos. Reage fortemente com a água e oxida-se rapidamente na presença do ar. É o metal mais leve depois do lítio. Tem aparência da prata e não é encontrado livre na natureza.

O ^{40}K é um emissor beta e gama que possui uma meia-vida de um milhão de anos e é o único isótopo radioativo do potássio de ocorrência natural, constituindo cerca de 0,0117% do total de potássio presente na natureza, os demais isótopos estáveis são o ^{39}K (93,3%) e ^{41}K (6,7%). Assim como os isótopos estáveis o ^{40}K também é encontrado em todos os tecidos e órgãos do corpo humano e em conjunto com os produtos de decaimento das séries do ^{238}U e ^{232}Th são os principais contribuintes da radioatividade natural das rochas. Segundo DICKSON & SCOTT (1997) o elemento potássio, com

seus diferentes isótopos, é o maior componente da crosta terrestre. Ele é litófilo e está concentrado preferencialmente nas rochas ígneas ácidas, em relação às intermediárias, básicas e ultrabásicas (VASCONCELLOS *et al.*, 1994).

O ^{40}K tem dois modos de decaimento: decaimento β^- , 89% de probabilidade, com produção do ^{40}Ca e, com 11% de probabilidade de decair por captura eletrônica para o ^{40}Ar . Ambos os filhos são estáveis conforme é esquematizado na Figura 1.

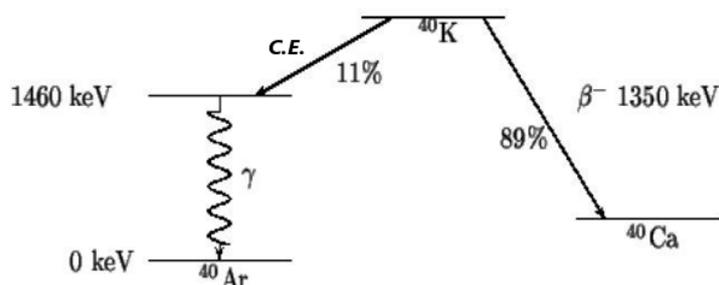


Figura 1 – Esquema do decaimento do ^{40}K (Modificado de ARAMBURU & BISBAL, 1994)

2.3.4 Rádio

O rádio é representado na tabela periódica com o símbolo Ra, pertence ao grupo dos metais alcalino-terrosos, possui número atômico 88 e peso atômico 226,025.

O comportamento geoquímico do rádio é considerado por possuir isótopos com elevada solubilidade e meia-vida apreciável, tanto na série do ^{238}U (^{226}Ra , $T_{1/2} = 1620$ anos) e ^{235}U (^{223}Ra , $T_{1/2} = 11,68$ dias) como na do ^{232}Th (^{228}Ra , $T_{1/2} = 6,7$ anos e ^{224}Ra , $T_{1/2} = 3,64$ dias). Portanto, sua mobilidade poderá ser uma fonte de desequilíbrio nas séries do ^{238}U e ^{232}Th . Sua mobilização se dá, em grande parte, nas águas subterrâneas, particularmente naquelas com alta salinidade. Sua mobilidade é reduzida pela coprecipitação com sulfatos de bário, óxidos ou sulfatos de Fe-Mn, ou através da adsorção pela matéria orgânica. Os radioisótopos ^{226}Ra e ^{228}Ra são emissores de radiação alfa, beta e gama, e possuem uma característica nuclear importante de produzir nêutrons se misturado com berílio.

2.4 Distribuição de K, U e Th em solos

As coberturas de solos geralmente têm forte efeito na atenuação da intensidade dos raios gama. Portanto, ainda que a concentração relativa dos radionuclídeos nos solos permaneça praticamente a mesma que nas rochas fontes, ocorrerá a atenuação, e como resultado disto, as rochas podem apresentar uma radioatividade menor, dando a impressão de serem mais máficas (VASCONCELLOS *et al.*, 1994).

DICKSON & SCOTT (1997) analisaram teores de K, U e Th em rochas e solos australianos por espectrometria gama e concluíram que os teores mais elevados estão relacionados com o aumento do teor de SiO₂, especialmente no caso dos teores de Th. Este comportamento é mostrado graficamente na Figura 2.

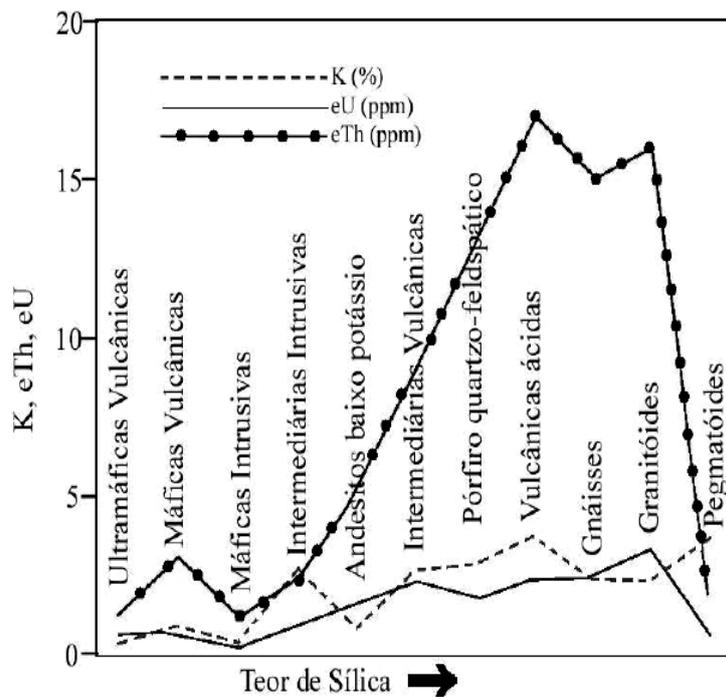


Figura 2 – Variação do conteúdo médio de K, eTh e eU para rochas ígneas intrusivas e extrusivas com aumento no conteúdo de sílica, modificado de DICKSON & SCOTT (1997).

O ciclo sedimentar é de grande valia no entendimento da distribuição dos radionuclídeos naturais. Neste ciclo, a coerência entre as concentrações dos radionuclídeos é destruída devido à diferente solubilidade desses elementos. O urânio é

facilmente oxidado para formar íon solúvel, enquanto o tório é carregado em suspensão melhor do que em solução, sendo facilmente fixado em argilas e resistatos secundários. Por isso, a razão Th/U varia muito nos sedimentos, dependendo em larga escala se a condição de deposição é um ambiente oxidante ou redutor (VASCONCELLOS *et al.*, 1994).

2.5 Radionuclídeos e o corpo humano

Os radionuclídeos, quando liberados no meio, com frequência se dispersam e se diluem, mas podem também concentrar-se em organismos vivos durante transferências na cadeia alimentar. As substâncias radioativas também podem se acumular na água, solo, sedimentos e ar, desde que a sua entrada seja maior que seu decaimento natural (ODUM, 1972 *apud* CUCCIA 2006).

A taxa de exposição à dose influencia na mutagênese, pois o DNA é sensível à radiação e pode ser rompido pela exposição a baixas doses de radiação. Um rompimento duplo é muitas vezes letal por ser de difícil reparo. DNA reparados incorretamente podem levar a mutações e carcinogênese (MØLLER & MOUSSEAU, 2006).

Em geral, há uma relação linear entre mutação celular e taxa de dose para baixas taxas de dose, e uma relação exponencial para altas taxas de dose (MØLLER & MOUSSEAU, 2006). A UNSCEAR estima que a dose efetiva média devido à radiação natural seja de 2,2 mSv.a⁻¹. O maior componente para a dose efetiva anual é a inalação de radônio e tório e seus filhos de meias-vidas curtas, 1,0 mSv. Em segundo lugar, vem a irradiação externa por radiação cósmica e fontes terrestres, 0,9 mSv. A contribuição menos expressiva, 0,3 mSv, é da ingestão de ⁴⁰K, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po e outros radionuclídeos naturais.

Os radionuclídeos presentes nos solos, ar e alimentos podem atingir o corpo humano por diversas vias. Os presentes no ar contribuem não só na exposição externa, como também na exposição interna, pois são inalados pela via respiratória. Os presentes na alimentação contribuem significativamente somente na exposição interna, pois são ingeridos na dieta do dia-a-dia. Os radionuclídeos presentes nos solos contribuem

diretamente na exposição externa, entretanto há uma contribuição indireta na exposição interna, pois esses radionuclídeos no solo podem migrar aos alimentos seguindo a cadeia alimentar (UNSCEAR, 2000). A Figura 3 mostra um esquema das vias da transferência desses radionuclídeos e a dose no corpo humano.



Figura 3 – Vias terrestres da transferência de radionuclídeos e a dose no corpo –
(Modificado de UNSCEAR, 2000)

O potássio é distribuído uniformemente no corpo humano e sua principal via de entrada são os alimentos. Ele é biologicamente necessário para controlar a homeostasia. A quantidade de potássio no corpo de um adulto é cerca de 0,18%, e 0,2% em crianças. A abundância natural do ^{40}K é de $1,17 \times 10^{-4}\%$ e uma atividade específica de $2,6 \times 10^8 \text{ Bq kg}^{-1}$ e um coeficiente de conversão de dose de $3 \mu\text{Sv a}^{-1}$ por Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2000). As doses equivalentes anuais do ^{40}K no corpo humano varia de $165 \mu\text{Sv a}^{-1}$ em adultos e $185 \mu\text{Sv a}^{-1}$ em crianças. Esses mesmos valores segundo a UNSCEAR (2000) são adequados para a dose efetiva devido a distribuição uniforme do potássio no corpo humano.

O urânio é retido no corpo humano principalmente no esqueleto. Alguns estudos mostram que suas distribuições nos ossos são bem uniformes (HARLEY, 1990). Segundo informações da UNSCEAR (2000), 70% da quantidade de ^{238}U no corpo estão nos ossos. O urânio é um metal nefrotóxico (prejudicial ao funcionamento dos rins). A toxicidade química do urânio é maior do que sua toxicidade radiológica. A absorção de urânio via intestino é pequena, somente uma pequena percentagem é ingerida. O urânio absorvido no sangue tende a se concentrar no esqueleto, onde essa quantidade depende das concentrações referente à localização geográfica, mas estima-se um valor aproximado de $70 \mu\text{g}$ para adultos (ICRP, 1976).

O tório apresenta uma baixa absorção no trato gastrointestinal (0,05% em adultos). Dessa forma, a principal via de contaminação se dá através da inalação do material particulado que contenha tório. Insolúvel em fluidos biológicos, a sua meia-vida de permanência no pulmão pode alcançar vários anos. A dose efetiva total de inalação e ingestão de radionuclídeos terrestres é de 310 μSv , 170 μSv desse valor é proveniente do ^{40}K e 140 μSv é proveniente dos radionuclídeos de meias-vidas longas das séries do tório e urânio (UNSCEAR, 2000).

Em muitos casos, a quantidade de radionuclídeos presente no organismo de uma pessoa pode ser descrita a partir de uma queda exponencial com o tempo. Isso se dá porque além do próprio decaimento a que o radionuclídeo se encontra sujeito, o conteúdo de uma dada substância no organismo é diminuído por processos de excreção.

Nesses casos, o parâmetro “meia-vida efetiva” quantifica, tal como a “meia-vida física” de um isótopo radioativo, o intervalo de tempo para que a concentração de um dado material radioativo decaia pela metade no corpo humano (BIRAL, 2002). A “meia-vida efetiva” (“ $T_{1/2\text{ eff}}$ ”) é, de fato, uma composição entre a “meia-vida física” de um dado isótopo (“ $T_{1/2\text{ fis}}$ ”) e a “meia-vida biológica”, de permanência dos átomos de um determinado elemento químico no organismo de uma pessoa (“ $T_{1/2\text{ biol}}$ ”). A meia-vida efetiva é dada pela Equação 1:

$$\frac{1}{T_{\frac{1}{2}\text{eff}}} = \frac{1}{T_{\frac{1}{2}\text{fis}}} + \frac{1}{T_{\frac{1}{2}\text{biol}}} \quad (1)$$

2.6 Equilíbrio Radioativo

A maioria dos sistemas geológicos está em equilíbrio radioativo, ou seja, as atividades (número de desintegrações por unidade de tempo) são constantes para todos os radioisótopos de cada série envolvida. Isto se deve ao fato do elemento pai possuir meia-vida extremamente longa em relação a do elemento filho mais próximo (KAPLAN, 1978).

O período necessário para que um sistema fechado, contendo inicialmente os nuclídeos pais de cada série natural de decaimento, atinja 98,5% do equilíbrio é cerca de seis vezes a meia-vida do radionuclídeo filho de menor constante de decaimento (KETCHAM, 1996 *apud* SANTOS, 2001). Dessa forma, a série do ^{238}U pode ser considerada em equilíbrio após um período de 1,5 milhões de anos, a série do ^{235}U em 190.000 anos e a do ^{232}Th em 40 anos. Uma vez que a série de decaimento esteja em equilíbrio, a partir da medida da abundância de um filho pode-se inferir a abundância do pai. A medida da concentração de ^{214}Bi , por exemplo, pode fornecer a medida da abundância de urânio, e a medida da concentração de ^{228}Ac pode indicar a abundância de tório (IAEA, 1979).

Devido às diferenças nas propriedades químicas e nucleares (meia-vida, energia de recuo, etc.) dos elementos pertencentes às três séries naturais de decaimento, estes podem ser separados durante processos superficiais, tais como intemperismo, transporte e deposição, rompendo-se o estado de equilíbrio. Materiais geológicos podem apresentar-se em desequilíbrio devido à entrada ou saída destes elementos do sistema. Se o sistema retornar à condição de fechado, o equilíbrio tende a ser restabelecido pelo acúmulo dos produtos de decaimento da série, ou pelo decaimento de um nuclídeo que não tenha sido produzido pelo decaimento de um nuclídeo pertencente ao sistema.

Em condições geológicas de superfície (ou próximas a ela), este sistema químico fechado pode não existir. O que é o caso dos locais de estudo neste trabalho. Os processos causados pelas alterações climáticas podem provocar introdução e remoção de material e, considerando que os decaimentos ocorrem em diferentes fases, com diferentes propriedades físicas e químicas, é provável que, sob estas condições climáticas, ocorra a dispersão de alguns elementos da cadeia. Isto provoca o desequilíbrio das séries de decaimento, ou seja, os produtos intermediários e finais não estarão presentes em qualquer ponto na proporção esperada. Sob estas condições, a medida da abundância de um produto de decaimento não necessariamente fornece a abundância do pai. Entretanto, o grau de desequilíbrio vai variar segundo diversos fatores, como a mineralogia dos radioelementos e de suas vizinhanças, como a presença de sulfatos e carbonatos. O clima, superfície hidrológica e topografia também influem neste equilíbrio (IAEA, 1979).

Um exemplo de influência deste desequilíbrio na análise é quando se pretende estimar o ^{238}U e ^{232}Th e para tanto utiliza-se os isótopos filhos ^{214}Bi e ^{208}Tl respectivamente. Essa estimativa pode não ser correta em relação ao decaimento. Para que o valor de concentração de um elemento-pai, determinado pela emissão gama de um de seus filhos tenha significado, é de suma importância que os membros da família radioativa envolvida estejam em equilíbrio radioativo. Na série do ^{232}Th , esse desequilíbrio raramente acontece. Contudo é comum acontecer com o urânio, isso se dá devido a possibilidade de remoção do radônio (^{222}Rn). O radônio é um gás, sendo assim pode escapar do solo ou das rochas e, como consequência, desestabilizar toda a série de decaimento, uma vez que o ^{214}Bi , principal emissor de radiação da série do urânio se forma após o decaimento do ^{222}Rn , como foi mostrado na Tabela 7.

Segundo CUCCIA, (2006) o equilíbrio está também relacionado ao volume da amostra estudada. Uma amostra pequena, portátil, tende a apresentar grau de desequilíbrio maior que uma grande amostra ou medida *in situ* de grande volume de material. O grau de desequilíbrio não é facilmente estabelecido com medidas de campo diretas, apesar de poder ser determinado em laboratório de várias maneiras, comparando os resultados das análises químicas com as estimativas fundamentadas no processo de desintegração ou medindo a radioatividade dos diferentes produtos de decaimento.

2.7 Grandezas Dosimétricas

As grandezas dosimétricas servem para quantificar os efeitos reais e potenciais dos processos de interação da radiação, corpuscular ou eletromagnética, com a matéria. Usualmente são utilizadas nas medidas de exposição externa à radiação as seguintes grandezas dosimétricas, definidas segundo ICRU (1998):

A Equação 2 mostra a exposição a qual é definida pelo quociente de dQ por dm , onde dQ é o valor absoluto da carga total de íons de um dado sinal, produzida no ar, quando todos os elétrons (negativos e positivos) liberados pelos fótons no ar, em uma massa dm , são completamente freados no ar. Sua unidade no SI é C kg^{-1} . A exposição pode ser expressa ainda numa unidade denominada de Röentgen (R), onde $1 \text{ R} = 2,58 \times 10^{-4} \text{ C kg}^{-1}$.

$$X = \frac{dQ}{dm} \quad (2)$$

Taxa de Exposição (Equação 3): definida pelo quociente dX por dt , onde dX é o incremento da exposição num dado intervalo de tempo dt . Sua unidade é ($C\ kg^{-1}\ s^{-1}$) ou ($R\ s^{-1}$).

$$X = \frac{dX}{dt} \quad (3)$$

Dose absorvida (Equação 4): definida pelo quociente de $d\bar{E}$ por dm , onde $d\bar{E}$ é a energia média depositada pela radiação ionizante na matéria de massa dm , num ponto de interesse. Sua unidade no SI é o Gray (Gy), onde $1\ Gy = 1\ J\ kg^{-1}$. Ainda é comum também representar a dose absorvida pela sua unidade antiga, denominada de rad (*radiation absorbed dose*), onde $1\ Gy = 100\ rad$.

$$D = \frac{d\bar{E}}{dm} \quad (4)$$

Taxa de dose absorvida (Equação 5): definida pelo quociente de dD por dt , onde dD é o incremento da dose absorvida num dado intervalo de tempo dt . Sua unidade é ($Gy\ s^{-1}$) ou ($rad\ s^{-1}$).

$$D = \frac{dD}{dt} \quad (5)$$

Kerma (*Kinetic Energy Released in Material*) (Equação 6): definida pelo quociente de dE_{tr} por dm , conforme, onde dE_{tr} é a soma de todas as energias cinéticas iniciais de todas as partículas carregadas liberadas por partículas neutras ou fótons, incidentes em um material de massa dm . Sua unidade no SI é (Gy).

$$K = \frac{dE_{tr}}{dm} \quad (6)$$

Taxa de Kerma (Equação 7): definida pelo quociente de dK por dt , onde dK é o incremento de Kerma num dado intervalo de tempo dt . Sua unidade é ($Gy\ s^{-1}$).

$$K = \frac{dK}{dt} \quad (7)$$

O Kerma possui duas componentes: Kerma de colisão, K_c , correspondente a energia dissipada localmente, por ionizações e/ou excitações; e o Kerma de radiação, K_r , significativa quando a energia é dissipada longe do local (e.g. raios-X característicos). As grandezas exposição, kerma e dose absorvida podem ser relacionadas, porém, deve-se levar em consideração alguns fatores como: (1) a exposição é uma grandeza definida para o ar e é somente válida para raios x e gama; (2) a dose absorvida é definida para a energia depositada em um ponto de interesse de um determinado volume; (3) a única componente do kerma que pode ser equiparada a dose absorvida é o kerma de colisão, pois é o que mais se aproxima da distribuição de energia num ponto de interesse.

Além de todos esses fatores, para que se chegue a uma relação adequada entre as três grandezas dosimétricas (X , D e K_c) é preciso assegurar que os pontos de interesse pertencentes a um dado volume se encontrem em uma determinada condição, denominado equilíbrio de partículas carregadas (EPC). Segundo ATTIX (1986), este ocorre quando:

- A composição atômica do meio é homogênea;
- A densidade do meio é homogênea;
- Existe um campo de radiação indiretamente ionizante;
- Não existem campos elétricos ou magnéticos de natureza não homogênea.

Para medidas ambientais de radiação gama no ar, estas condições são facilmente obtidas (CONTI, 1999). Logo, nestas condições, considerando a exposição sofrida em um ponto de interesse no ar devido aos fótons, sob condições de EPC, têm-se a seguinte relação exibida pela Equação 8, onde D_{ar} e $(K_c)_{ar}$ estão na unidade (Gy) e X em ($C\ kg^{-1}$).

$$1 \times 10^{-2} D_{ar} = (1.10^{-2} K_c)_{ar} = 2,26. xX \quad (8)$$

Outra unidade utilizada nas medidas de exposição à radiação gama é o Sievert (Sv), onde $1\ Sv = 1\ J\ kg^{-1}$. O Sievert é muito utilizado no campo da proteção radiológica para indicar os efeitos biológicos da exposição à radiação ionizante.

A contribuição dos radionuclídeos naturais na taxa de dose absorvida no ar depende da concentração desses radionuclídeos. A maior parte da radiação gama são provenientes desses radionuclídeos terrestres, o que leva a uma relação direta entre a radiação gama terrestre e as concentrações desses radionuclídeos no solo. Se as atividades específicas dos radionuclídeos são conhecidas, pode-se portanto medir a taxa de dose absorvida no ar a 1 m. O fator de conversão do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K são de: 0,427, 0,662 e 0,043 nGy h⁻¹ por Bq kg⁻¹, respectivamente (UNSCEAR, 2000).

A distribuição da exposição externa devido à radiação terrestre depende das características geográficas do lugar tais como latitude e altitude (SAGHATCHI *et al*, 2008). Algumas medidas foram feitas sobre a altitude em relação a taxa de dose absorvida no ar até o solo. A UNSCEAR (2000) indica que o valor representativo para essa dose ao nível do mar é de 32 nGy h⁻¹. Segundo SAGHATCHI *et al* (2008), existem alguns estudos internacionais que mediram os níveis da radiação gama terrestre com o intuito de avaliar a dose efetiva na população no ambiente *outdoor* quanto no *indoor*. O valor da taxa de dose global nos ambientes *outdoor* é de 59 nSv h⁻¹, com intervalo de 18-93 nSv h⁻¹. Para dentro dos ambientes esse valor é de 75 nSv h⁻¹ com intervalo de 20-200 nSv h⁻¹.

O conceito de dose equivalente foi primeiramente proposto para proteção radiológica (ICRP, 1977). São atribuídos fatores de peso para órgãos e tecidos do corpo humano, os quais representam as frações do risco estocástico total da irradiação do tecido ou órgão quando todo o corpo é irradiado uniformemente. Para o uso dos fatores de peso propostos pelo ICRP para a computação da dose equivalente é importante saber que sua aplicabilidade independe do sexo e da idade. A dose equivalente H_T é calculada pela dose absorvida média em um tecido ou órgão T, para todas as radiações R, ponderada pelo fator de peso da radiação w_R (ICRU, 2005):

$$H_T = \sum_R w_R D_T \quad (9)$$

A dose efetiva E é definida pela soma ponderada das doses equivalentes em todos os tecidos ou órgãos do corpo (IAEA, 2007):

$$E = \sum_T w_T H_T \quad (10)$$

A unidade de dose efetiva no Sistema Internacional de Unidades e Medidas é o joule por quilograma ($J\ kg^{-1}$), denominada Sievert (Sv). Os valores de w_T para os órgãos ou tecidos considerados para o cálculo da dose efetiva, estipulados pela ICRP 60 (1991), são apresentados na Tabela 8.

Tabela 8 - Fatores de peso para tecido e órgãos e para os diferentes tipos de radiação e suas faixas de energia, w_T e w_R (ICRP, 1991)

Tecido ou órgão	Fatores de peso w_T	Tipos e faixa de energia	Fator de peso w_R
Gônadas	0,20	Fótons todas energias	1
Medula óssea	0,12	Elétrons todas energias	1
Cólon	0,12	Nêutrons, energia:	
Pulmão	0,12	< 10keV	5
Estômago	0,12	10 keV a 100 keV	10
Bexiga urinária	0,05	> 100 keV a 2 MeV	20
Mama	0,05	> 2 MeV a 20 MeV	10
Fígado	0,05	> 20 MeV	5
Esôfago	0,05	Prótons, exceto os de recuo, energia > 2 MeV	5
Tireóide	0,05	Partículas alfa, fragmento de fissão, núcleos pesados	20
Pele	0,01		
Superfície óssea	0,01		
Restantes*	0,05		

*cérebro, intestino grosso superior, intestino delgado, rins, útero, pâncreas, vesícula, timo, adrenais e músculo.

Segundo a UNSCEAR (2000) para estimar a dose efetiva anual ambiental, pode-se calcular a partir do coeficiente de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva e o fator de ocupação seja ele *indoor* ou *outdoor*. O valor médio desses parametros varia com a idade da população e o clima no local considerado. Na UNSCEAR (1993) é indicado o uso de $0,7\ Sv\ Gy^{-1}$ como o coeficiente de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva recebida por adultos e 0,2 como o fator de ocupação, isso significa a fração de tempo em que uma pessoa permanece no ambiente *outdoor* e no caso de

exposições indoor esse fator de ocupação eleva-se a 0,8. Estudos em diversos locais no mundo apontam um valor médio de dose absorvida no ar de 84 nGy h⁻¹ em ambientes indoors e de 59 nGy h⁻¹ em ambientes outdoors (UNSCEAR, 2000). A dose efetiva anual é, portanto, calculada da seguinte forma:

Ambientes *Indoors*: $84 \text{ nGy h}^{-1} \times 8760 \text{ h} \times 0,8 \times 0,7 \text{ Sv Gy}^{-1} = 0,41 \text{ mSv}$;

Ambientes *Outdoors*: $59 \text{ nGy h}^{-1} \times 8760 \text{ h} \times 0,2 \times 0,7 \text{ Sv Gy}^{-1} = 0,07 \text{ mSv}$.

A média mundial da dose anual efetiva é de 0,48 mSv, com um intervalo de 0,3-0,6 mSv em diferentes países. Para crianças e bebês esses valores elevam-se cerca de 10% e 30% (UNSCEAR, 2000).

2.8 Métodos para estimar as exposições

Dois métodos para avaliação da exposição externa de um NORM são recomendados pela UNSCEAR (2000). O primeiro método é medir diretamente a taxa de dose externa gama no ar *outdoor* e *indoor*, subtraindo a taxa de dose dos raios cósmicos. O segundo método baseia-se nas medidas da concentração dos radionuclídeos mais relevantes presentes no solo. Esses dois métodos são bem validados e são bastante utilizados para estimar exposições, seja ela *outdoor* ou *indoor*.

Pesquisas realizadas com medidas diretas da taxa de dose absorvida no ar provenientes dos radionuclídeos naturais terrestres já foram realizadas em várias regiões do mundo (UNSCEAR, 1993). E o resultado da taxa de dose média absorvida no ar variou de 24-160 nGy h⁻¹, com uma média de 57nGy h⁻¹ (UNSCEAR, 2000). Entretanto, é mais comum determinar as concentrações de radionuclídeos no solo em laboratório para depois estimar as doses. Por muitos anos essa estimativa foi baseada nos cálculos de BECK (1976), entretanto com o passar do tempo surgiram novas pesquisas com cálculos que estimaram a taxa de dose efetiva *outdoor* usando o método Monte Carlo (SAITO *et al*, 1990; PETOUSSI *et al*, 1989; ECKERMAN & RYMAN, 1993). Os resultados destes três cálculos estão apresentados na Tabela 9; os valores são bastante semelhantes e segundo a UNSCEAR (2000) podem ser considerado iguais.

Tabela 9 – Taxa de dose efetiva outdoor para um adulto por unidade de concentração de radionuclídeos naturais no solo (UNSCEAR, 2000)

Radionuclídeo	Taxa de dose efetiva por unidade de concentração (nSv h ⁻¹ por Bq kg ⁻¹)		
	[Beck, 1972] ^a	[Saito e Jacob, 1995; Saito <i>et al.</i> ,1998] ^b	[Eckerman & Ryman, 1993] ^b
⁴⁰ K	0,029	0,030	0,033
²³² Th	0,46	0,42	0,51
²³⁸ U	0,30	0,31	0,35

^a Calculadas como $E = X \times 0,0087 \text{ Gy R}^{-1} \times 0,7 \text{ Sv Gy}^{-1}$

^b $H_E + 0,01 H_{\text{skin}}$

2.9 Exposição Externa *Indoor*

Embora este trabalho seja voltado à exposição externa *outdoor* é válido ressaltar que a exposição *indoor* é inerentemente maior do que a exposição externa *outdoor*, e quando se leva em consideração o tempo em que o indivíduo passa nos ambientes *indoors* essa exposição é ainda mais significativa. A exposição externa *indoor* é principalmente determinada pelos materiais de construção do ambiente, seja areia, cimento, pedras e cerâmicas (MALATHI *et al.*, 2008). Ambientes contruídos de madeira pouco acrescentam na exposição *indoor* e podem ser equivalentes à *outdoor*.

Segundo a UNSCEAR (2000), a taxa de dose absorvida no ar *indoor* devido a radiação gama terrestre é, em geral, 40% maior do que a *outdoor*. Pesquisas relacionando as doses *indoor* e *outdoor* apontaram razões inferiores a 1 em regiões onde a construção com madeira é comum (Tailândia, Estados Unidos e Islândia). Razões acima de 2 foram encontradas na Suécia e em Hong Kong onde a dose absorvida no ar *indoor* foram superiores a *outdoor* ou porque os valores *outdoor* eram muito mais baixos do que o *indoor* como foi encontrado na Holanda.

2.10 Exposição Externa *Outdoor*

As exposições externas *outdoors* são provenientes dos radionuclídeos presentes nos solos. As concentrações desses radionuclídeos são relativas ao tipo de rocha que esses solos se originaram. O maior nível de radiação está associado com rochas ígneas, tais

como granito, e menores níveis com rochas sedimentares. Há exceções, porém, de alguns xistos e rochas ricas em fosfatos que possuem radioatividade relativamente alta por ter concentrações de radionuclídeos. Segundo a UNSCEAR (2000) há muitos estudos para determinar o *background* devido aos níveis de radionuclídeos nos solos, que por sua vez pode estar relacionado com a taxa de dose absorvida no ar.

Diversas pesquisas, em diferentes países, já foram realizadas em ambientes *outdoor* com o intuito de avaliar a radioatividade natural (SAGHATCHI, *et al.*, 2008; LU & ZHANG, 2006; LU & ZHANG, 2008; LU, *et al.*, 2008; MALANCA, *et al.*, 1995; VEIGA, *et al.*, 2006; MOHANTY, *et al.*, 2006). Essas pesquisas indicam que os três principais componentes da radiação gama externa são o ^{226}Ra da série do ^{238}U , o ^{232}Th e o ^{40}K . Esses radionuclídeos contribuem de maneira aproximadamente igual na dose da radiação gama externa incidente no indivíduo, seja por exposição *outdoor* ou *indoor* (UNSCEAR, 2000).

Como já explicado anteriormente, os produtos de decaimento das cadeias do urânio e tório não estão em equilíbrio radioativo em um sistema aberto. Os isótopos ^{238}U e ^{234}U podem encontrar-se em um ambiente aberto em um equilíbrio aproximado, entretanto eles são separados por dois radionuclídeos de meias-vidas curtas, ^{234}Th e ^{234}Pa . Esses processos de decaimento podem, dessa forma, ocasionar dissociação dos seus produtos da fonte na qual se encontra, facilitando subsequente sua transferência para o ambiente. É devido a isso que o ^{234}U pode estar deficiente em relação ao ^{238}U nos solos e em maior concentração em rios e mares. O ^{226}Ra , por sua vez, pode ter uma pequena diferença na concentração em relação ao ^{238}U , porque poderá ocorrer separação entre seus pais ^{230}Th e urânio e também devido a grande mobilidade do rádio no meio-ambiente. Os produtos de decaimento do ^{226}Ra inclui o ^{222}Rn , um gás nobre que difunde para fora dos solos, o que ajuda a reduzir ainda mais a taxa de exposição da série do ^{238}U . O radônio dessa série é o ^{222}Rn , o qual possui uma meia-vida curta de 3,82 dias como foi observado na Tabela 6, entretanto seus filhos ^{210}Pb e ^{210}Po possuem meias-vidas longas e têm uma maior importância para avaliação de dose externa *outdoor* do que o radônio (UNSCEAR, 2000).

O radônio, por ser um gás inerte, é capaz de se deslocar, por grandes distâncias, dos locais onde é gerado durante sua curta existência. Seu escape ocorre na forma de um íon

de recuo devido à energia recebida durante o decaimento do núcleo pai com consequente difusão do átomo neutro através dos poros internos dos grãos minerais e posterior difusão e transporte intergranular na matriz sólida permeável. Os átomos de radônio migram para a água subterrânea ou para as camadas superiores do solo. O radônio se concentra nas camadas superiores do solo, de onde eventualmente escapam (OLIVEIRA, 2006).

Os produtos de decaimento do ^{222}Rn com meia-vida longa são o ^{210}Pb (T1/2 = 22 anos), o ^{210}Bi (T1/2 = 5,02 dias) e o ^{210}Po (T1/2 = 138,3 dias), onde o ^{210}Pb é o elemento de maior relevância por seu tempo de meia-vida maior que dos outros elementos. Assumindo que toda a atividade dos filhos do ^{226}Ra na atmosfera é proveniente do ^{222}Rn , a sua produção e remoção devem obedecer o estado estacionário (WARNECK, 2000). Estes filhos radioativos do ^{222}Rn são principalmente íons positivos, que podem associar-se com partículas de ar polarizado, água ou aerossóis. JUNGE (1963) mostrou que cerca de 90% da radioatividade natural na atmosfera é encontrado em aerossóis com raio entre 0,05 e 0,5 μm , com um tamanho médio de 0,1 μm .

Na série do ^{232}Th , considerações similares à série do ^{238}U podem ser observadas. O ^{228}Ra tem uma meia-vida longa, o que pode ocasionar a separação de seu radionuclídeo pai, ^{232}Th . Já o radônio desta série, ^{220}Rn , possui uma meia-vida muito curta e seus produtos de decaimento não possuem meia-vida longa.

Normalmente o ^{40}K possui uma atividade específica nos solos maior do que os radionuclídeos ^{238}U e ^{232}Th . A UNSCEAR, 2000 sugere valores de 400, 35 e 30 Bq kg^{-1} para o ^{40}K , ^{238}U e ^{232}Th respectivamente como as médias desses radionuclídeos no mundo a partir dos valores de referências de alguns países.

Uma das grandezas mais estudadas para avaliar a radiação gama *outdoor* proveniente dos radionuclídeos ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K é a taxa dose absorvida no ar a 1 m da superfície do solo. Os fatores de conversão utilizados para conversão de 1 Bq kg^{-1} para nGy h^{-1} são correspondentes a 0,621 para o ^{232}Th , 0,462 para o ^{238}U e de 0,0417 para o ^{40}K , conforme recomendado pela UNSCEAR, 2000 e utilizados por diversos autores (SAGHATCHI, *et al.*, 2008; ; LU & ZHANG, 2006; LU & ZHANG, 2008; LU, *et al.*, 2008;; MALANCA, *et al.*, 1995; VEIGA, *et al.*, 2006; MOHANTY, *et al.*, 2006). A faixa típica

do valor da taxa de dose absorvida no ar no mundo é de 10-200 nGy h⁻¹. Além da variação de lugar para lugar, a taxa de dose gama no ar também pode variar com o tempo. Um dos motivos dessas flutuações é a remoção dos filhos do radônio no ar por precipitação, umidade do solo e a cobertura de neve. Contínuos registros de monitoramento mostram variações de ± 5% ao dia da taxa de dose absorvida no ar. A lixiviação ocasionada pela chuva pode reduzir a presença dos filhos do radônio no local e diminuir, assim, a taxa de dose no ar por um curto intervalo de tempo em cerca de 50 até 100%. O aumento dos intervalos ou da quantidade de chuva reduz por cerca de 5% em poucas horas devido à blindagem ocasionada pela umidade no solo. Logo após o cessar da chuva a dose absorvida volta ao normal em algumas horas ou dias, dependendo da saturação do solo. Já a camada de neve diminui cerca de 1% da dose absorvida no ar para cada centímetro de neve (UNSCEAR, 2000).

Os diversos autores ; LU & ZHANG, 2006; LU & ZHANG, 2008; LU, *et al.*, 2008;; MALANCA, *et al.*, 1995; VEIGA, *et al.*, 2006; MOHANTY, *et al.*, 2006) revelam que em um ambiente, sem impacto ambiental nuclear, a alta dose absorvida no ar em todo mundo está associada a presença de minerais ricos em tório e urânio presentes no solo. Isso é ressaltado pela UNSCEAR (2000) onde é, ainda, declarado que não são incomuns essas regiões onde a taxa de dose absorvida no ar chegam a várias centenas de nanograys por hora. Entretanto, sabe-se que essa alta exposição externa *outdoor* em zonas habitadas podem ser reduzidas com as construções de estradas e urbanização.

2.11 Índices de Risco da Radiação Gama

Segundo VEIGA *et al.* (2006) as areias de praia podem ser utilizadas como material de construção. Dessa maneira, é de fundamental importância avaliar os índices de risco da radiação gama (*Gamma-Ray Radiation Hazard Indexes*) dessas areias para certificar se elas podem trazer algum risco para os futuros moradores (LU, 2008). O risco de utilizar essas areias na construção civil pode ser causado devido às concentrações dos radionuclídeos naturais ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K. Como 98,5% dos efeitos radiológicos da série do urânio são produzidos pelo rádio e seus filhos, a contribuição do ²³⁸U foi substituída pelo seu filho ²²⁶Ra.

A atividade equivalente do rádio (*radium equivalent activity*) é um índice que foi inserido para representar a atividade específica do ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K como uma única medida que leva em consideração os riscos da radiação associados a esses radionuclídeos.

Segundo VEIGA *et al.* (2006), a Ra_{eq} está relacionada com as doses internas e externas do radônio e seus filhos. O valor limite da Ra_{eq} para material de construção é de 370 Bq kg^{-1} para sua utilização com segurança. A Ra_{eq} assume que 370 Bq kg^{-1} de ^{226}Ra produz a mesma taxa de dose gama do que 259 Bq kg^{-1} de ^{232}Th ou 4.810 Bq kg^{-1} de ^{40}K (LU & ZHANG, 2008). Assim como no trabalho de BERETKA & MATHEW (1985), neste restringe-se a discussão à exposição a raios gama, sem considerar as concentrações de radônio, porque estas dependem de fatores como alterações nos fluxos de ar e porosidade dos materiais, sendo mais aplicáveis medições de raios gama e radônio *in loco*.

BERETKA & MATHEW (1985) definiram outros índices que representam os riscos da radiação interna e externa na construção civil. O índice de risco externo (*external hazard index - H_{ex}*) é obtido a partir da expressão da Ra_{eq} através da suposição de que seu máximo valor permitido corresponde ao valor limite da Ra_{eq} (370 Bq kg^{-1}). Este índice serve para avaliar a taxa de dose da radiação gama devido à exposição da radiação gama dos radionuclídeos nos materiais de construção. Além dessa radiação externa, o radônio e seus produtos de meias-vidas curtas participam da exposição, causando maior detrimento ao sistema respiratório. A exposição interna para o radônio e seus filhos é denominada de índice de risco interno H_{in} (*Internal Hazard Index*).

Há, também, um outro índice denominado de índice de nível representativo (*Representative Level Index*), I_{yr} , usado para estimar o nível de risco da radiação gama associada com o radionuclídeo natural em material para construção (HIGGY, 2000). Este índice é pouco estudado e portanto, pouco encontrado na literatura.

2.12 Radioproteção e Regulamentação

A UNSCEAR – (1996) ressalta que a preocupação quanto à proteção radiológica vinha sendo focalizada no ser humano e procura, por meio do relatório, estabelecer os efeitos da radiação ao meio-ambiente. Segundo o documento, os mamíferos são os organismos mais sensíveis à radiação ionizante, seguidos pelos pássaros, peixes, répteis e insetos. As plantas também são sensíveis, em diferentes intensidades. Aparentemente, a capacidade reprodutiva dos indivíduos é o atributo mais afetado.

LOPEZ *et al.* (2004) realizaram um pesquisa entre países da Europa, com a finalidade de conhecer o estado da arte de proteção radiológica quanto a exposição a radiação natural. Segundo os autores, a ICRP e o *Council of the European Union* recomenda que os países tomem ações para lidar com a questão de radônio e outras fontes de radiação natural em locais de trabalho. A maioria dos países pesquisados (ressalta-se que nem todos responderam aos questionários enviados) já possui níveis de referência estabelecidos, especialmente para minas e trabalhos subterrâneos. Para escritórios e escolas, normalmente os níveis são os mesmos que para indivíduos do público. Os limites, entretanto, variam para cada país. Os autores ressaltam a necessidade de maior unificação dos padrões na Europa, para formar uma base mais sólida para investigação e monitoração. Na Tabela 10 são apresentados os limites estabelecidos por alguns países pesquisados.

A UNSCEAR (2000), com a finalidade de determinar as situações em que precauções de proteção radiológica devem ser tomadas ao lidar com material de radioatividade natural elevada, admite algumas considerações. Assumindo concentrações de poeira de 5 mg m^{-3} , exposição ocupacional contínua e nenhuma proteção respiratória, afirma-se que materiais com atividade entre 1000 e 10.000 Bq kg^{-1} do radionuclídeo pai podem resultar em doses anuais efetivas de 1 a 2 mSv por exposição interna e externa. A ICRP recomenda o limite de dose efetiva anual de 20 mSv ano^{-1} , média de cinco anos, para indivíduos ocupacionalmente expostos. Para o público, o limite de dose efetiva é de 1 mSv ano^{-1} . A CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear, órgão orientador e fiscalizador de atividades nucleares no Brasil, estabelece os mesmos limites de dose efetiva no país, por meio da norma CNEN-NN-3.01 (2006).

No Brasil a posição regulatória 3.01/001 refere-se aos requisitos da Norma da CNEN “Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica” relacionados aos critérios de exclusão, isenção e dispensa da aplicação de requisitos de proteção radiológica. No item 3.1.2 diz:

“Consideram-se desde já exposições excluídas, aquelas devido à presença de ^{40}K no corpo, à radiação cósmica na superfície da terra, ou às concentrações não alteradas de radionuclídeos naturais existentes em praticamente todos os materiais ou matérias primas.”.

Tabela 10 - Limites de dose devida a radiação natural em alguns países da Europa
(LOPES, *et al*, 2004)

País	Nível de referência (mSv a ⁻¹)			
	Mínas	Outros locais subterrâneos	Indústrias	Escritórios e escolas
Bélgica	1	1	1	1
Dinamarca			5	
Estônia			20	
Finlândia	1	1	1	1
Alemanha			6	
Grécia	1	1	1	1
Hungria	20	20	20	
Irlanda	1	1	1	1
Itália	1		1	
Lituânia	50	50	50	5
Noruega	20	20	20	20
Polônia	1	1	1	1
Portugal	50	20		
Rep. Tcheca	6	6	6	20

Sendo assim, as areias monazíticas e outras fontes naturais de radiação estão excluídas do controle da CNEN e dessa forma não são aplicadas ações de proteção radiológica para redução da intensidade ou probabilidade de ocorrência da exposição.

A isenção se aplica a práticas e fontes associadas a práticas que, em função dos baixos níveis de radiação envolvidos, atendam aos critérios de isenção e/ou níveis de isenção

estabelecidos nesta Posição Regulatória. Para tanto, há uma tabela onde são empregados valores para os níveis de isenção e que devem levar em conta algumas considerações:

- a) *devem ser aplicados apenas a quantidades moderadas de material, isto é, até um máximo de 1 tonelada de material radioativo;*
- b) *a aplicação a radionuclídeos naturais está limitada à sua incorporação deliberada em produtos ao consumidor ou ao seu uso como fonte de radiação ou por suas propriedades elementares, quando a exposição a estes radionuclídeos não estiver excluída;*
- c) *no caso de haver mais de um radionuclídeo presente no material, a soma apropriada de razões da atividade, ou concentrações de atividade, pelo nível de isenção correspondente não deve exceder a 1 (um); e*
- d) *a isenção de grandes quantidades de material com valores de concentração de atividades inferiores àquelas apresentados na tabela 1 (da Posição Regulatória) pode necessitar maiores considerações por parte da CNEN, exceto quando a exposição for excluída.*

Dessa forma, para o uso dessas areias de praia, com possíveis altas concentrações de radionuclídeos natural, na construção civil, é esta a única norma nacional vigente que possa ser utilizada para esse devido fim, desde que não seja usado mais que uma tonelada deste material. Como foram medidas as concentrações de atividade dos isótopos: ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{228}Ac , ^{224}Ra e ^{226}Ra , segue abaixo a Equação 11, que estabelece os níveis isenção:

$$\frac{A^{U^{238}} + A^{Th^{232}} + A^{K^{40}} + A^{Ac^{228}} + A^{Ra^{224}} + A^{Ra^{226}}}{10^1 + 10^0 + 10^2 + 10^1 + 10^1 + 10^1} \leq 1 \quad (11)$$

onde, $A^{U^{238}}$, $A^{Th^{232}}$, $A^{K^{40}}$, $A^{Ac^{228}}$, $A^{Ra^{224}}$, $A^{Ra^{226}}$ são as atividades específicas do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{228}Ac , ^{224}Ra e ^{226}Ra respectivamente em Bq g^{-1} . Os fatores no denominador são os níveis de isenção correspondente para cada radionuclídeo em questão conforme sugere a tabela 1 da Posição Regulatória 3.01/001 da CNEN.

2.13 Espectrometria Gama

A espectrometria gama associada ao método de análise de pulsos vem sendo utilizada no estudo da radioatividade ambiental (MOHANTY *et al.*, 2004; VEIGA *et al.*, 2006; ALENCAR & FREITAS, 2005; LU & ZHANG, 2006; LU *et al.*, 2008 e GONZÁLEZ-CHORNET & GONZÁLEZ-LABAJÓ, 2004). A sua grande vantagem em relação a outras técnicas deriva da maior penetração da radiação gama na matéria, sendo um método não destrutivo de análise. Além disso, as atividades de um número grande de radionuclídeos podem ser determinadas simultaneamente. Em contrapartida, a espectrometria gama natural apresenta problemas de sensibilidade quando aplicada na análise de radionuclídeo em amostras com baixas concentrações, ou para as quais se dispõe de massa limitada.

Essa técnica consiste na detecção dos raios gamas emitidos pelos isótopos radioativos presentes na amostra visando a estimativa da quantidade dos mesmos sem a necessidade de separação química dos elementos. Dessa forma, o potássio é medido pela emissão da radiação gama 1,46 MeV emitido pelo decaimento do ^{40}K . O ^{238}U e o ^{232}Th são os pais de duas séries radioativas cujos isótopos estáveis são o ^{206}Pb e o ^{208}Pb respectivamente, como visto nas Tabelas 6 e 7. O raio gama mais energético emitido na série do urânio provém do decaimento do ^{214}Bi (1,76 MeV) e na série do tório provém do ^{208}Tl (2,62 MeV). São esses raios, normalmente, utilizados nas medidas das quantidades dos radioelementos pais das séries, assumindo o equilíbrio radioativo – quando todos os elementos decaem na mesma razão (DURRANCE, 1986).

2.13.1 Detecção Gama

Eletrônica Nuclear

Os detectores de radiação transformam os sinais originais da interação da radiação com o material sensível do detector em sinais elétricos, que são depois processados em uma cadeia de medição. Os módulos eletrônicos usados para a aquisição dos dados foram:

1. Fonte de alta tensão, cuja função é alimentar o detector. A fonte de alta tensão foi utilizada em 3000 V.

2. Amplificador linear, para processar os sinais vindos do pré-amplificador do detector. Ele tem a função de dar forma e ganho de amplitude aos pulsos medidos, provenientes do sinal de carga coletado. Um fator importante a ser considerado na escolha do amplificador é o tempo de formação do pulso, que deve ser selecionado para otimizar a performance total quando altas taxas de contagens precisam ser medidas. Para detectores de Ge coaxiais, a constante de tempo para otimizar a resolução está entre 2 – 4 μs . Entretanto, se as taxas de contagens são maiores que 200 s^{-1} , constantes de tempo de 2 μs ou maiores contribuem para a produção de empilhamento e para as incertezas no cálculo das áreas dos picos, devido a distorções na sua forma. O tempo de formação do pico do amplificador utilizado foi de 0,5 μs .
3. Placa multicanal acoplada a um computador PC justado para 4096 canais, com software Genie 2000 para Windows.
4. Osciloscópio ligado na saída do amplificador para analisar a forma do pico de saída. O osciloscópio usado é do tipo digital, de tempo real com largura de banda de 100 MHz, taxa de amostra de 1GS/s e extensão de registro de 2500 pontos para cada canal.

O cristal do detector absorve a energia de um raio gama incidente e produz um pulso de corrente, cuja energia é proporcional à energia absorvida. Em seguida o pulso inicial de carga formado no detector e no pré-amplificador que está acoplado junto ao detector adquire a forma gaussiana e é amplificado no amplificador. Os pulsos de saída deste amplificador vão para o analisador multicanal, onde são classificados e armazenados de acordo com sua altura. Assim um espectro adquirido pelo analisador multicanal representa o número de contagens por canal como uma função da altura do pulso ou da energia. A Figura 4 esquematiza os componentes da eletrônica utilizada.

Diante da necessidade da escolha de um detector que forneça uma boa resposta na detecção da radiação gama emitida por radionuclídeos naturais, os detectores de HPGe são os instrumentos mais adequados na medida direta para baixos níveis de radioatividade e oferece melhor desempenho nas medidas de fótons de baixa energia de amostras ambientais. Outra característica relevante para o uso do HPGe é sua alta

resolução, o que possibilita a separação dos picos de energias muito próximo proporcionando assim, uma menor incerteza na medida (JÚNIOR, *et al* 2009).

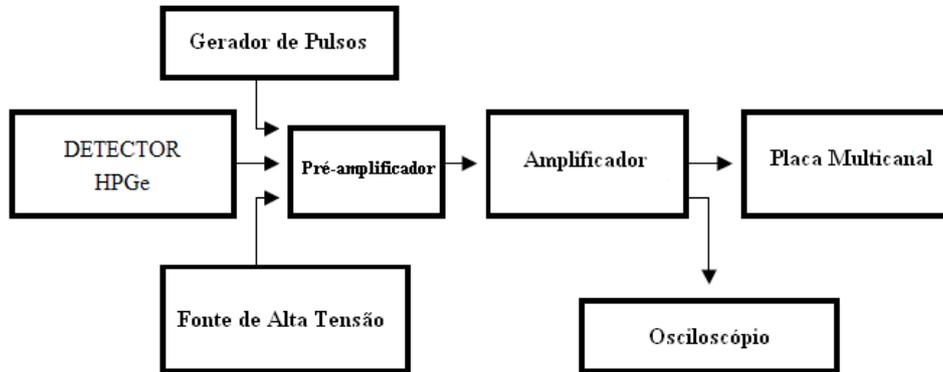


Figura 4 – Esquema dos componentes da eletrônica utilizada

2.13.1 Resolução

O pico de absorção total de uma dada transição corresponde à total absorção e conversão da energia do fóton incidente em cargas elétricas cujo número de eventos segue uma distribuição gaussiana e seu centróide fornece o valor da energia deste fóton. Na formação de um dado fotopico pode-se conhecer a resolução do detector, sendo tal característica diretamente proporcional à raiz quadrada dos números de cargas coletadas, a largura e a meia altura fornece a resolução do detector na região da energia de interesse (KNOLL, 2000).

Segundo KNOLL (2000), a resolução em energia é considerada o parâmetro mais importante para definir a função resposta do detector, sendo por definição, calculada em relação à medida da largura do fotopico à metade da altura máxima (FWHM: *Full Width at Half Maximum*). Neste caso, considera-se que a altura dos pulsos tendem a uma distribuição normal em torno de um valor médio. O valor da resolução em energia é calculada pela Equação 12:

$$R = \frac{FWHM}{E} \times 100 \quad (12)$$

onde: R é a resolução em energia; FWHM a medida da largura do fotopico a metade da altura máxima e E a energia média do fotopico. Quanto menor o valor de R, melhor a resolução do sistema em energia, de forma que energias mais próximas possam ser separadas. As interferências do sistema, tais como, ruídos, fótons de baixa energia, e outros, influenciam no alargamento do fotopico, diminuindo a resolução. A medida da largura total do fotopico a metade da altura máxima, $FWHM_T$, pode ser calculada pela Equação 13 (KNOLL, 2000):

$$(FWHM)_T^2 = (FWHM)_D^2 + (FWHM)_X^2 + (FWHM)_E^2 \quad (13)$$

onde: $(FWHM)_D^2$ representa a flutuação estatística no número de transportadores de cargas geradas no detector; $(FWHM)_X^2$ é a contribuição devido à coleta incompleta de carga, sendo mais significativa em detectores de volume grande e campo elétrico baixo. $(FWHM)_E^2$ representa os efeitos de borda em todos os componentes eletrônicos que cercam o detector, ou seja, é a contribuição do ruído eletrônico.

A Figura 5 ilustra um espectro de uma fonte monoenergética para um detector com boa e outro com má resolução. As áreas sob as curvas são iguais (se as condições de aquisição são as mesmas). Ambas as distribuições possuem o mesmo valor médio, embora as larguras sejam diferentes.

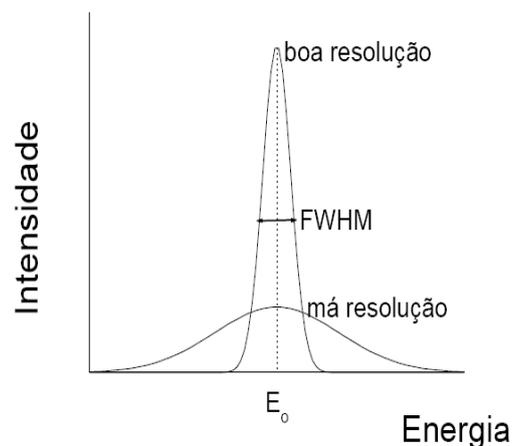


Figura 5 – Espectros esquemáticos onde são demonstrados como seria um com boa resolução e outro com má resolução (KNOLL, 2000)

2.13.2 Eficiência de detecção

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

A eficiência de detectores de radiação secundária pode ser dividida em três classes: eficiência absoluta, eficiência intrínseca e eficiência relativa. A eficiência absoluta é definida como a razão entre o número de pulsos registrados no detector pelo número de quanta de radiação emitido pela fonte. A eficiência intrínseca é a razão entre o número de pulsos registrados no detector pelo número de fótons de radiação incidente no detector. de cintilação de NaI(Tl) de 3” x 3” a 25 cm de distância da fonte, como definido em “*Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Rays Detectors*” (I.E.E.E., 1986).

Cálculo das Atividades

As atividades específicas foram calculadas, após a contagem, utilizando a Equação 22, sugerida pela IAEA, 1991:

$$A_{Ei} = \frac{N_{Ei}}{\epsilon \gamma t m} \quad (22)$$

onde, A_{Ei} é a atividade específica calculada para um determinado fotopico; N_{Ei} é a área líquida do fotopico na energia E, calculada pela Equação 21; ϵ é a eficiência detectada para a energia E ; t é o tempo de contagem (s); γ é o número de gamas por desintegração para o radionuclídeo na transição de energia E; e m é a massa em kg da amostra analisada.

Os principais parâmetros a serem considerados numa análise por espectrometria gama para garantir um bom desempenho dos detectores e um aumento na confiabilidade dos

resultados são: a eficiência de contagem por energia do fóton, pois, a determinação exata da eficiência de contagem é o problema chave para medidas de radiação gama; boa calibração do sistema de medidas; alta resolução do sistema por fotopico; baixo limite de detecção; um sistema que forneça o cálculo da área líquida do fotopico; um arranjo experimental que permita validar os resultados experimentais com a utilização de padrões certificados; minimização da auto-absorção pelo uso de padrões com densidades semelhantes às amostras analisadas e padronização das massas das amostras analisadas, dos padrões e do tempo de aquisição (JÚNIOR *et al.*, 2009).

A curva de calibração em eficiência de um espectrômetro gama para uma determinada geometria de contagem é obtida a partir da medida de fontes radioativas padrões com atividades, energias e intensidades gama muito bem conhecidas e meias-vidas suficientemente longas para não influir na taxa de contagem obtida. A curva de calibração em eficiência consiste em uma função polinomial que relaciona com exatidão a eficiência de detecção de um dado sistema para uma determinada energia gama. Comumente, tal função é descrita por um polinômio logarítmico.

A eficiência absoluta de detecção é definida como a razão entre o número de fótons detectados e o número de fótons emitidos, conforme indica a Equação 18, apresentando uma característica probabilística.

$$\varepsilon = \frac{N_{\text{fótons det}}}{N_{\text{fótons emit}}} \quad (18)$$

A eficiência depende da geometria da amostra em estudo, da distância amostra – detector, do tipo da amostra, etc.

Com relação à correção do efeito geométrico, este foi considerado igual à 1, uma vez que, como já mencionado as fontes possuem a mesma geometria.

2.13.13 Correções Aplicadas

Normalmente em uma análise de espectrometria gama são aplicadas correções nas áreas dos fotopicos de interesse em virtude das condições reais em que são realizadas as

medidas. São elas: correção para a radiação de fundo que já foi explicado anteriormente, correção para o tempo morto do sistema de detecção, correção para o efeito de auto absorção ou atenuação e correção para geometria, quando as fontes em estudo diferem das fontes padrões utilizadas na determinação da curva de calibração. O tempo morto é corrigido pelo programa de aquisição de espectros gama.

Fatores como alta densidade, alto número atômico e espessura do material da fonte podem ocasionar auto-absorção e atenuação da radiação na própria fonte ou atenuação nos envoltórios, devendo portanto, ser aplicado um fator de correção para estes efeitos. Como os raios gamas de menor energia são menos penetrantes do que os de alta energia, eles acabam sendo mais auto-absorvidos, como por exemplo o ^{210}Pb ($E=46,5$ keV). Neste caso esses fótons de baixa energia acabam interagindo com a própria amostra antes de atingirem o detector, acarretando a determinação de uma concentração menor do que a real.

A correção da auto-absorção consiste na determinação da quantidade de radiação atenuada pela amostra e pode ser dificultada pelo fato do coeficiente de atenuação, para energia de interesse, ser fortemente dependente da composição da amostra. Sendo assim essa correção pode ser feita conhecendo-se exatamente a composição da amostra ou pelo uso do modelo de correção estabelecido por CUTSHALL *et al.*, (1983).

Quando é obtido uma curva de calibração em eficiência com um padrão de densidade diferente das densidades das amostras em estudo, esse problema pôde ser resolvido aplicando a Equação 24 (MOSTAJABODDAVATI, 2006):

$$\log \varepsilon(E_{\gamma}, \rho) = \sum_n a_n (\rho) \log(E_{\gamma})^{n-1} \quad (24)$$

onde, E_{γ} é a energia em MeV do raio gama, $\varepsilon(E_{\gamma})$ é a eficiência absoluta em porcentagem, ρ é a densidade da amostra em g cm^{-3} e a_n são parâmetros ajustados a partir dos resultados experimentais.

2.13.14 Limites de detecção e quantificação

O limite mínimo de detecção (LD) para um espectrômetro gama representa a sua capacidade de detectar um fóton gama na presença de interferentes, tais como: radiação de fundo, espalhamento Compton, ruídos do sistema de medidas, entre outros. O LD dependerá do tipo de amostra a ser analisada, da energia da radiação, da geometria de contagem, do tipo de detector, do fundo do sistema e do tempo de contagem. Segundo JÚNIOR et al.,(2009), deve-se utilizar uma amostra de solo de uma área sem alterações radioecológicas para calcular o limite de detecção. Neste caso, a massa e o tempo de contagem também devem ser padronizados. O valor do LD foi calculado usando a Equação 25:

$$LD=(4,66\sqrt{NEi})/\varepsilon\gamma mt \quad (25)$$

NEi é a contagem líquida; ε é a eficiência de contagem; γ é abundância gama percentual do radionuclídeo em consideração; m a massa (kg); t o tempo de contagem (s) e 4,66 é o fator constante correspondente a um nível de confiança de 95%.

O limite de quantificação (LQ) é a menor concentração do analito em uma amostra, que pode ser determinada com nível aceitável de precisão e exatidão, sob determinadas condições experimentais. Sua determinação é comumente realizada utilizando a Equação 26:

$$LQ=X^-+10s \quad (26)$$

onde, X^- média dos valores dos brancos e s o desvio padrão dos brancos.

O limite de quantificação para cada elemento foi calculado como o dobro do limite de detecção. Segundo THOMPSON (2002) apud CUCCIA (2006), quando é necessário assumir uma concentração abaixo da qual o método analítico não pode operar com precisão aceitável, este limite pode ser arbitrariamente tomado como um múltiplo, normalmente dois, do limite de detecção.

2.13.15 Incertezas

Quando se pretende realizar medidas com amostras caracterizadas por um nível muito baixo de emissão gama, por exemplo, amostra de origem ambiental, é de suma importância reduzir as interferências de fótons provenientes do meio ambiente (basicamente, radiação cósmica e de materiais próximos ao detector). Para tal, deve-se colocar o detector e a amostra no interior de uma blindagem de chumbo ou ferro de cerca de dez centímetros de espessura, que atenua a radiação externa. Com a introdução desta blindagem, o limite de detecção diminui consideravelmente (ARAMBURU & BISBAL, 1994).

Segundo CUCCIA (2006) as variações na densidade e flutuações estatísticas das contagens são as principais fontes de erro para as medidas por espectrometria gama. A incerteza da atividade (σ_A) das determinações foi calculada considerando as variáveis independentes, para propagação de erros aleatórios. A incerteza associada às variáveis tempo, t , e massa, m , foram desprezadas, pois são erros sistemáticos. A frequência, f , e a constante de decaimento, λ , são valores tabelados sem incerteza associada. Para a eficiência, ε , a incerteza também foi desconsiderada, pois as eventuais flutuações são desprezíveis; procurou-se minimizar este erro sistemático, que pode variar com a geometria da amostra. Portanto, σ_A pode ser aproximada pela incerteza de contagem (σ_C), por ser esta a maior incerteza absoluta.

Quanto à incerteza σ_C , para taxas de contagens de materiais radioativos, se a meia-vida do radionuclídeo for suficientemente grande em relação ao tempo de observação, pode-se admitir que os valores seguem a distribuição de Poisson, que tem a propriedade de ter desvio padrão dado pela raiz quadrada da média. Mesmo com apenas uma leitura, o desvio padrão pode ser estimado desta maneira, ou seja, $\sigma_C = \sqrt{C}$ onde C é a contagem do fotopico (CUCCIA, 2006). Feitas essas considerações, a incerteza relativa associada à determinação das atividades pode ser aproximada pela Equação 27 (CUCCIA, 2006). Considerando que as áreas dos picos utilizadas para avaliação das atividades já foram calculadas eliminando o *background*, este não foi considerado para propagação de erros.

$$\frac{\sigma_A}{A} = \sqrt{\left(\frac{\sigma_C}{C}\right)^2} \Rightarrow \frac{\sigma_A}{A} = \frac{1}{\sqrt{C}} \quad (27)$$

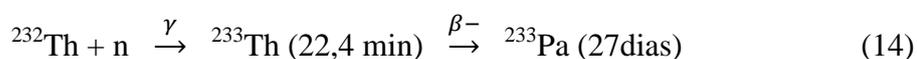
2.14 Análise por Ativação Neutrônica

É possível, também, medir a concentração do ^{232}Th pela técnica de Análise por Ativação Neutrônica Instrumental (AAN) que também envolve a espectrometria gama. A AAN consiste no bombardeamento da amostra por uma fonte de nêutrons, produzindo uma reação do tipo nêutron, gama (n, γ) em muitos dos elementos presentes na amostra (DE CORTE, 1987). Dentre as reações com nêutrons essa é a de maior interesse para uma AAN pois, para a grande maioria dos elementos essa é a reação mais favorável para nêutrons térmicos, embora haja exceções no caso dos elementos extremamente leves (KNOLL, 2000). Normalmente, os produtos dessa reação ao decaírem emitem raios gama característicos, que podem ser eficientemente detectados, permitindo além da identificação da composição da amostra a sua quantificação.

Os espectros da radiação gama (γ) dos isótopos radioativos produzidos são medidos com o auxílio de detector semicondutor e placa eletrônica multicanal acoplada a um software específico que é capaz de separar os diferentes níveis de energia de radiação (100 a 2000 keV) bem como quantificar para cada energia sua atividade específica (EHMANN & VANCE, 1991).

Este método de análise é praticamente livre de problemas analíticos, como efeitos de matriz e interferências devido à sobreposição de picos. A determinação do tório é particularmente eficiente, pois o radioisótopo produzido pela irradiação possui meia-vida longa e as contagens podem ser realizadas quando a atividade da maior parte dos elementos já diminuiu. A principal desvantagem da técnica de ativação neutrônica é a necessidade de um reator nuclear. Além disso, o tempo para a determinação de tório pode chegar a várias semanas, o que é inviável em análises de rotina de produção (COLLIER, *et al.*, 2001).

A reação nuclear de ativação do ^{232}Th (seção de choque 7.3 barns) é representada pela Equação 14, em que é produzido ^{233}Pa , emissor de energia gama de 311,8 keV e meia-vida de 27 dias (ZAIDI, *et al.*, 1999).



2.15 Análise de Nêutrons Retardados de Fissão (ANRF)

Segundo TUPYNAMBÁ (1969), a análise de urânio pode ser feita por diversos métodos, químicos ou físicos. Os métodos químicos, como gravimetria, podem ser demorados e caros. Métodos físicos, como contagem alfa, podem ser longos e de precisão inferior, além de oferecer pouca discriminação entre urânio e tório. Nestes termos, a análise por ativação de nêutrons atrasados de fissão torna-se convidativa, quando há disponibilidade de um reator nuclear. Suas principais vantagens são ausência de manipulação da amostras, sensibilidade, interferências de matriz facilmente controláveis, tempo de análise curto, além de ser um ensaio não-destrutivo.

Fundamentalmente, o método é um processo de ativação. Entretanto, distingue-se da ativação em geral porque se mede o fluxo de nêutrons retardados de fissão. A ativação que leva à emissão de nêutrons é característica quase exclusiva dos nuclídeos fissionáveis. Com exceção de alguns nuclídeos leves capazes de emitir nêutrons, somente alguns produtos de fissão tem tais propriedades.

Para cada energia do nêutron incidente, a probabilidade de ocorrer uma reação nuclear depende da secção de choque do radionuclídeo alvo. A Figura 6 mostra o comportamento da secção de choque do ^{235}U em função da energia do nêutron incidente.

Após o bombardeamento do ^{235}U por um nêutron térmico, um nêutron é absorvido e podem ocorrer dois importantes mecanismos para que os nuclídeos liberem a energia acumulada. O primeiro mecanismo é a emissão de raios gama e o segundo é a fissão do nuclídeo que resulta na formação de nuclídeos, aos pares, com massa em torno da metade da massa do nuclídeo fissionado, além de diversas partículas emitidas como cerca de dois ou três nêutrons prontos em média. Enquanto 99% dos nêutrons de uma fissão são prontos (emitidos por volta de 10^{-13} segundos depois da fissão), uma pequena fração é formada pelos nêutrons retardados que são formados na ordem de milisegundos a segundos depois do subsequente decaimento dos produtos de fissão. Estes, por sua vez, são gerados pelo decaimento β^- dos fragmentos de fissão que possuem alta relação nêutron/próton e são conhecidos como precursores de nêutrons retardados.

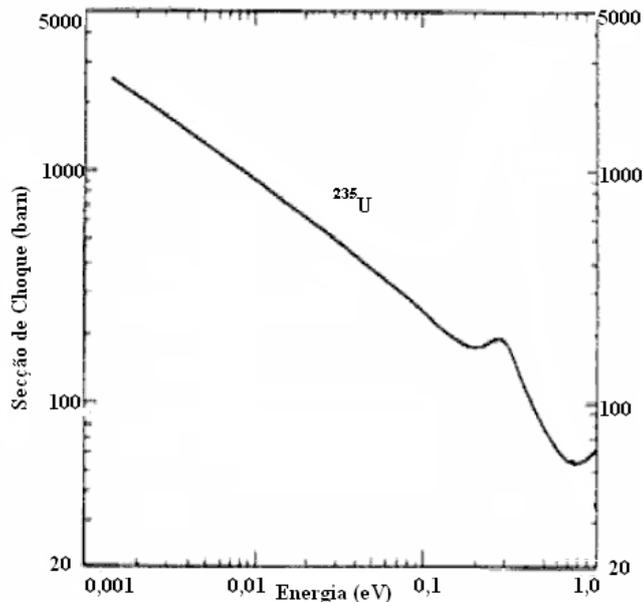


Figura 6 – Comportamento da Seção de choque microscópica de fissão do ^{235}U em função da energia do nêutron incidente. (Modificado de KNOLL, 2000.)

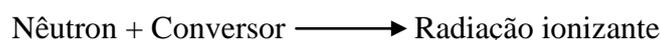
Para exemplificar, pode-se citar o ^{87}Br . Este nuclídeo pode decair por emissão β^- para ^{87}Kr , que pode emitir um ou dois gamas ou decair diretamente a seu estado fundamental. Em 2% dos casos, contudo, o ^{87}Kr se desintegra em um tempo muito curto em ^{86}Kr emitindo um nêutron. Como o ^{87}Br não é o verdadeiro emissor do nêutron, ele é denominado precursor do nêutron retardado. Acredita-se que haja mais de vinte precursores responsáveis pela emissão de nêutrons atrasados (TUPYNAMBÁ, 1969).

A detecção de nêutron não consiste apenas na detecção de sua presença, mas também na sua quantificação, energia e propriedades correlatas. Esse tipo de detecção não é trivial devido à falta de carga dessas partículas e à peculiaridade de sua interação com a matéria. As fontes de nêutrons também geram radiação gama que podem interferir na sua medida, sendo necessário que o sistema de detecção seja capaz de discriminar essas interferências (KNOLL, 2000).

O nêutron é uma partícula nuclear fundamental tendo massa e tamanho aproximadamente iguais aos do próton, mas com carga elétrica igual a zero. É instável, quando livre no espaço onde se desintegra em um próton e um elétron com meia vida de

transformação de 12 minutos (KNOLL, 2000). Ele é detectado de maneira indireta, isto é, faz-se necessário o uso de materiais conversores.

Os principais tipos de detectores sensíveis aos nêutrons são: os gasosos, auto-alimentados, cintiladores e semicondutores. Eles possuem internamente um conversor de nêutrons para produzir radiação ionizante. Segundo ZAMBONI (2007), esses conversores são fundamentados em reações nucleares do tipo:



O conversor é um material que apresenta alta probabilidade de interação com o nêutron (alta secção de choque), portanto a energia do nêutron incidente irá influenciar em sua detecção.

O ^{10}B é usado em vários tipos de detectores de nêutrons, principalmente nos gasosos, usando o gás de BF_3 ou detectores revestidos com boro. Esse elemento apresenta secção de choque de absorção de 3.840 barns para nêutrons térmicos, e integral de ressonância de 1720 barns (KNOLL, 2000).

2.16 O Código Monte Carlo Neutron Particle Code (MCNP)

O código MCNP (Monte Carlo Neutron Particle Code) foi desenvolvido pelo Alamos National Laboratory, para a simulação de processos nucleares, através da análise do transporte de nêutrons, fótons e elétrons individualmente na matéria, ou da associação dessas partículas em diversas combinações. As aplicações incluem algumas áreas específicas como radioproteção e dosimetria, física médica, modelamento e análise de detectores, modelamento de aceleradores, modelamento de reatores de fissão, entre outras (BRIESMEISTER, 2003).

Para a análise do transporte de partículas o MCNP usa o método de Monte Carlo, que é um método estocástico, usado para resolver problemas complexos, que não podem ser modelados em códigos computacionais baseados em métodos determinísticos. O método de Monte Carlo é capaz de reproduzir teoricamente um processo estatístico,

simulando os eventos probabilísticos individuais sequencialmente, como ocorre na simulação da interação de partículas nucleares com a matéria. As distribuições de probabilidade que governam estes eventos se dão através de um processo de amostragem estatística baseado na seleção de números aleatórios. Na simulação do transporte de partículas por esse método, cada uma das muitas partículas é seguida desde a fonte até algum evento terminal, como absorção ou escape, por exemplo. Assim, o resultado de cada etapa de vida da partícula é determinado pela amostragem aleatória das distribuições probabilísticas do evento (BRIESMEISTER, 2003).

Para simulação do transporte de partículas o usuário cria um arquivo de entrada (*input*), compreendido pelo MCNP, contendo informações sobre o problema, tal como especificações da geometria, descrição dos materiais, localização e características da fonte de nêutrons, fótons ou elétrons, tipo de resposta desejada para o problema, entre outros.

O método Monte Carlo é, também, aplicado para simular o processo de detecção para obter espectros gamas e para determinar a curva de eficiência de uma determinada geometria (RODÉNAS *et al.*, 2007). O Código MCNP 5 é normalmente utilizado para este tipo de simulação, pois é adequado para modelar o detector e por conter um tally, F8, que é específico para detectar a distribuição da altura do pulso (DAP), nos quais os picos de energia se comportam como uma função gaussiana como pode ser observada na Equação 15:

$$f(E) = C e^{-\left(\frac{E-E_0}{A}\right)^2} \quad (15)$$

onde E é a energia alargada, E₀ é a energia não alargada, C a constante de normalização e A a Largura de Gauss.

Para tal é necessário determinar a curva experimental FWHM em função da energia e ajustá-la a fim de calcular o alargamento da função gaussiana que é feito por meio da Equação 16:

$$A = \frac{FWHM}{2\sqrt{\ln 2}} \quad (16)$$

A FWHM desejada é especificada pelas constantes fornecidas pelo usuário para o arquivo de entrada do MCNP-5, “a”, “b”, e “c” e mostram uma resposta não linear dada por:

$$FWHM = a + b\sqrt{E + cE^2} \quad (17)$$

onde E é a energia dos raios gama incidentes e a, b, c: constantes ajustadas a partir da Equação 17.

Dessa maneira, o processo de detecção é simulado pelo MCNP para obter a DAP por partículas emitidas da fonte, que é, por sua vez, a eficiência absoluta para cada fotopico e para cada geometria modelada (RODÉNAS, *et al.*, 2007).

Um cartão especial com a opção GEB (Gaussian energy broadening) do programa é também incluído, pois com sua utilização é permitido obter um espectro comparável com o experimental.

Segundo EWA (2001), embora o método experimental possa adquirir bom resultados com baixa incerteza, ele tem também algumas limitações que podem, com isso, propagar erros ao final da determinação da curva de eficiência em função da energia, como as seguintes:

1. erros decorrentes da inconsistência das probabilidades de emissão de fótons usados por diferentes pessoas.
2. determinação específica e precisa da fonte, pois qualquer informação equivocada pode afetar nas medidas
3. uso de diferentes fontes de baixa, média e alta energias, que podem conduzir a vários picos de energias, criando assim uma larga incerteza quando as interpolações são feitas através dos ajustes das curvas, e finalmente
4. restrição ao uso de fontes pontuais, principalmente para geometrias simples.

É exatamente contra essas limitações que a aplicação do Monte Carlo torna-se viável. Além da simulação do Monte Carlo também ser a única ferramenta que proporciona a investigação da interação dos fótons com o volume sensível do detector excluindo o

efeito da janela de alumínio visto que esses detectores são selados pelo fabricante. Segundo LUDINGTON & HELMER (2000), isso pode ser útil na análise de uma eventual falha de desempenho do detector, desde que essa curva de calibração seja realizada antes do problema.

O código MCNP é atualmente bem utilizado na determinação da eficiência de fotopicos para vários tipos de geometrias fonte-detector, fontes de formas complexas e principalmente no uso de diferentes modelos de marinelli beaker associado a um detector HPGe. Os resultados na literatura são sempre satisfatórios e seus desvios em relação aos dados experimentais variam de 0,2 a 12% (EWA, *et al.*, 2001; RÓDENAS, *et al.*, 2007).

Capítulo 3 – Materiais e Métodos

3.1 Área de estudo

A área de estudo se estende ao longo da região costeira do extremo sul baiano que abrange as costas do Descobrimento e da Baleia conforme mostrado na Figura 7. Por se tratar de um local com grande reserva de areia monazítica e sem estudos científicos, foram selecionadas as praias de Porto Seguro (16°26'S 39°03'W), Arraial D'Ajuda (16°29'S 39°04'W), Trancoso (16°35'S 39°05'W), Caraíva (16°48'S 39°08'W), Cumuruxatiba (17°20'S 39°13'W), Prado (17°20'S 39°13'W), Alcobaça (17°33'S 39°11'W) e Caravelas (17°43'S 39°10'W).

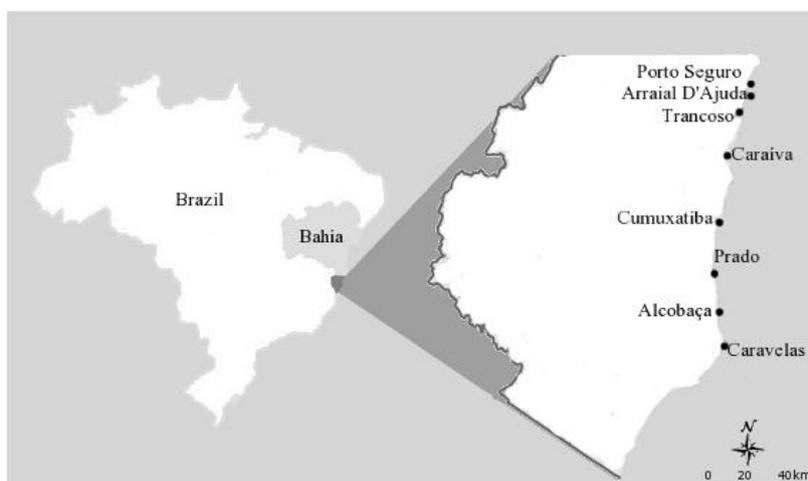


Figura 7 – Mapa da região do extremo sul da Bahia mostrando os locais de estudo

Porto Seguro é a cidade, em estudo, com maior extensão territorial e populacional, com cerca de 2.408,5 km² e 122.896 habitantes (IBGE, 2009). Os municípios de Arraial D'Ajuda, Trancoso e Caraíva são administradas pela prefeitura de Porto Seguro. A cidade de Prado possui uma extensão territorial de 1.664,54 km² e uma população de 26.016 habitantes (IBGE, 2009). À Prado pertence a vila de Cumuruxatiba, o local é caracterizado por suas areias escuras e assim como os demais locais em estudo, possui um grande potencial turístico devido à suas belas praias. Ainda segundo o IBGE, 2009 as cidades de Caravelas e Alcobaça são as menores cidades em estudo, possuem extensão territorial de 2.361,28 e 1.505,99 km² respectivamente e população de 22.115 e 20.242 habitantes respectivamente.

A região em estudo caracteriza-se por sua vegetação de Mata Atlântica e cobertura detritica terció-quartenária como aspecto geológico. O clima varia de úmido, como é o caso de Porto Seguro, a subúmido, nos demais municípios (SEI, 2007).

3.2 Coleta de amostras

As amostras foram coletadas entre 0-10 cm de profundidade em locais turísticos das praias citadas acima em maio de 2008, janeiro de 2009 e maio de 2009. Cada amostra foi obtida de outras três sub-amostras em uma área correspondente a 1,0 m² e homogeneizadas *in situ* em frascos de polietileno (ALENCAR & FREITAS, 2005). A Figura 8 apresenta um dos locais de coleta e o procedimento de coleta na área. Foram pesadas cerca de 1,5 kg desta mistura o que foi considerado representativo para o local. As amostras foram secadas por 48 h em estufa a temperatura de 60°C e seladas em *Marinellis beaker*, onde permaneceram por 30 dias para atingir o equilíbrio do ²²⁶Ra com ²²²Rn (ALENCAR & FREITAS, 2005; FREITAS & ALENCAR, 2004). As amostras a serem submetidas à ativação neutrônica foram pesadas em frascos de polietileno adequados para posterior irradiação assim como as amostras para a análise de nêutrons retardados.



Figura 8 – A imagem à esquerda mostra a praia de areia branca de Cumuruxatiba, um dos locais do estudo; a imagem à direita mostra o momento da realização da coleta.

3.3 Métodos de Análise

Neste estudo foram utilizadas as técnicas de análise por espectrometria gama e de ativação neutrônica através de dois métodos: ativação neutrônica instrumental relativa e por nêutrons retardados de fissão.

3.3.1 Espectrometria Gama

Esta técnica foi aplicada nas determinações de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{40}K , e como parte da técnica de ativação neutrônica, na determinação do ^{232}Th . Neste estudo se dará mais ênfase a esta técnica devido à comparação com o MCNP5.

3.3.1.1 Calibração em Eficiência

Neste item é descrita a calibração em eficiência para uma amostra acondicionada em Marinelli, geometria escolhida para medidas de ^{40}K , ^{226}Ra e ^{228}Ra . Essa escolha foi devido ao fato de que essa geometria seja a mais adequada para amostras ambientais.

Foi utilizado um detector de germânio hiperpuro *Canberra*, geometria coaxial, com eficiência nominal de 15%. O software de aquisição de dados utilizado foi *Genie 2000 – Gamma Acquisition & Analysis*, da *Canberra*. Esse programa permite escolher a janela espectral desejada, fornecendo informações sobre o pico. As janelas espectrais selecionadas foram definidas ajustando-se a região de interesse (ROI) para determinação de uma gaussiana de uma razão próxima a 1,0 e com o menor desvio padrão possível da área líquida do pico, para cada amostra.

O detector é situado dentro de uma câmara blindada, conforme é observado na Figura 9. Além desta blindagem, está localizado dentro de um laboratório com *background* reduzido, um dos menores do mundo. Para redução das contagens de fundo, a sala foi construída em aço carbono, circundada por uma camada de água de 1,20m, contida por uma parede de concreto.



Figura 9 - Blindagem e sala blindada do detector (CUCCIA, 2006)

As medidas da radiação gama natural foram efetuadas utilizando-se um detector de germânio hiperpuro (HPGe) modelo GC1519 do tipo coaxial com eficiência de 15% e resolução de 1,9 keV (FWHM) para o fotopico do ^{60}Co 1,33 MeV. Nos detectores semicondutores de HPGe – *High Purity Germanium*, a resposta do detector à radiação gama se faz de maneira indireta, por meio de elétrons secundários gerados pela interação dos raios gama da amostra com os átomos do cristal de Ge do detector. Essa interação pode ocorrer por efeito fotoelétrico, Compton e produção de pares (KNOLL, 2000).

Para a calibração em eficiência foi utilizado uma solução padrão líquida com os isótopos ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{134}Cs e ^{137}Cs acondicionados em Marinelli. O recipiente se situou sobre o detector o que proporciona uma geometria de alta eficiência. A solução para a calibração apresentou mais do que 20 fótons, entretanto somente 9 fotopicos foram formados no espectro. Dessa forma, foram simulados os mesmos fotopicos para realizar a comparação entre ambos. Procedeu-se à contagem deste padrão, por vinte e quatro horas. Em seguida, calculou-se a eficiência para cada energia de cada isótopo por meio da Equação 19, em que ε representa a eficiência, N_{Ei} , é a área líquida do fotopico, A_o a atividade inicial do isótopo no padrão, m é a massa da amostra, t , é o tempo de contagem e f , a probabilidade de emissão de radiação gama para a determinada energia.

$$\varepsilon = \frac{N_{Ei}}{A_o \cdot m \cdot t \cdot f} \quad (19)$$

Para obter as eficiências de detecção, os espectros foram analisados pelo programa *Genie 2000 – Gamma Acquisition & Analysis*, da *Canberra*. A curva de calibração em eficiência para a geometria de medida foi ajustada a uma função polinomial. Na Figura 10 é apresentada uma curva de calibração típica, obtida por meio das medidas das fontes padrões. A partir da curva de calibração, foram determinadas as eficiências para as energias das transições gama de interesse.

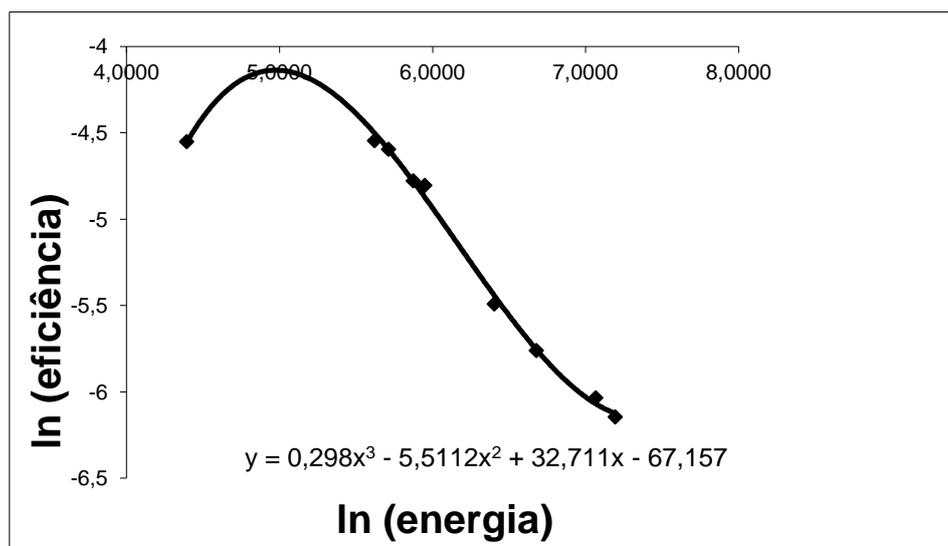


Figura 10 – Curva de calibração em energia do detector de HPGe

O gráfico que representa as curvas de eficiência tem como parâmetro as eficiências de contagens, determinadas em função do radionuclídeo emissor gama e das energias características. Essas curvas são consideradas o ponto de partida na determinação das eficiências de contagens dos radionuclídeos em estudo, e com base nestas, as atividades específicas dos radionuclídeos estudados.

Uma outra curva de eficiência foi traçada usando o MCNP-5 baseado no método Monte Carlo. A simulação da calibração com um programa informático validado é uma ferramenta auxiliar importante nos laboratórios de radioatividade ambiental, que torna útil tanto para otimizar o procedimento de calibração como para diminuir a quantidade de “resíduos” radioativos produzidos. Dessa maneira, foi obtida a curva de calibração em eficiência do detector para geometria considerada (marinelli-detector) a partir da simulação do processo de detecção, obtendo assim os fotopicos do espectro teórico similar aos que foram obtidos experimentalmente. Segundo RÓDENAS *et al.* (2007) o resultado obtido com a simulação do Monte Carlo comparado com a medida

experimental valida o modelo que permitirá obter a curva de eficiência para o detector estudado e a geometria considerada.

Aa Figura 11 mostra a geometria para a determinação da eficiência para amostra em Marinelli.

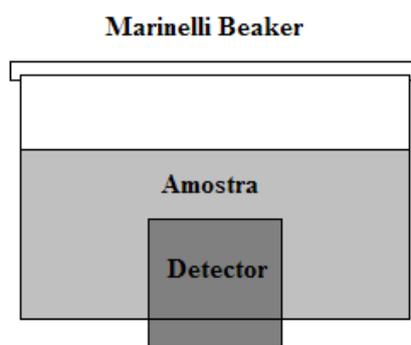


Figura 11 – Representação esquemática do frasco Marinelli Beaker colocado sobre o detector HPGe.

Os Marinelli Beakers foram preenchidos com a amostra ambiental e acondicionados em volta do detector, de forma que a geometria béquer-detector se tornou corretamente reproduzível. A radiação contida nas amostras pode ser corretamente medida se a eficiência do detector tiver sido adequadamente medida com padrões de atividades conhecidas com as mesmas dimensões, densidades e composições químicas semelhantes.

3.3.1.2 Determinação do ^{40}K , ^{226}Ra e ^{228}Ra

Estas determinações foram realizadas no Laboratório de Trítio do serviço de análises ambientais do CDTN/CNEN. Foi utilizado o sistema de espectrometria gama composto do detector HPGe com 15% de eficiência nominal, eletrônica associada e software Genie 2000, CANBERRA para aquisição e análise dos espectros gamas.

As amostras de areia depois de secas, como descrito anteriormente, foram armazenadas, cerca de 500g de cada amostra, em *Marinellis* de 500 mL cada, devidamente fechados para evitar a perda dos gases ^{222}Rn e ^{220}Rn até um período de 30 dias antes de cada

análise. Na família do ^{238}U , esse tempo de repouso garante que ^{226}Ra , ^{222}Rn e seus filhos de meias-vidas curtas, em especial ^{214}Pb e ^{214}Bi estejam em equilíbrio, ou seja, possuam a mesma atividade. Na família do tório, o tempo de trinta dias assegura o equilíbrio entre ^{224}Ra , ^{222}Rn e todos os filhos, até o final da cadeia.

Segundo JÚNIOR, *et al.*, (2009) a medida da radiação de fundo (*background*, BG) é muito importante em instrumentação nuclear, pois mede o nível de radioatividade do ambiente no qual estão sendo realizadas às medidas radiométricas.

Para a contagem do BG, foi utilizado um recipiente vazio com a mesma geometria dos recipientes utilizados nas contagens das amostras. Essas contagens obedeceram também o mesmo tempo de contagem das amostras. No final, cada contagem de BG foi subtraída da contagem de cada amostra analisada, calculando-se assim, a contagem líquida da área do fotopico pela Equação 21:

$$N_{Ei} = \int_{a=u}^v X_a - BG \quad (21)$$

onde, N_{Ei} é a área total líquida do fotopico de interesse (número total de impulsos por segundo); u é a região de interesse (ROI – Region of Interests) do canal inicial da área do fotopico; v é a (ROI) do canal final da área do fotopico; X_a é a contagem em cada canal e BG é a contagem da radiação de fundo (*background*). A Figura 12 ilustra uma comparação dos espectros entre uma amostra aleatória de areia da pesquisa e a radiação de fundo do sistema.

Para o cálculo de atividade foi aplicado a Equação 22, item 2.13.1.2.

A calibração em energia de um detector é a primeira etapa, primeiramente foi feita a calibração em energia. Para tanto, foram utilizadas fontes seladas com a mesma geometria de ^{60}Co , ^{133}Ba , ^{241}Am , ^{152}Eu e ^{137}Cs . As fontes foram colocadas sobre o detector e o valor da energia dos picos, registrado no canal em que foi formado. Após a definição dos espectros, traçou-se a curva de calibração.

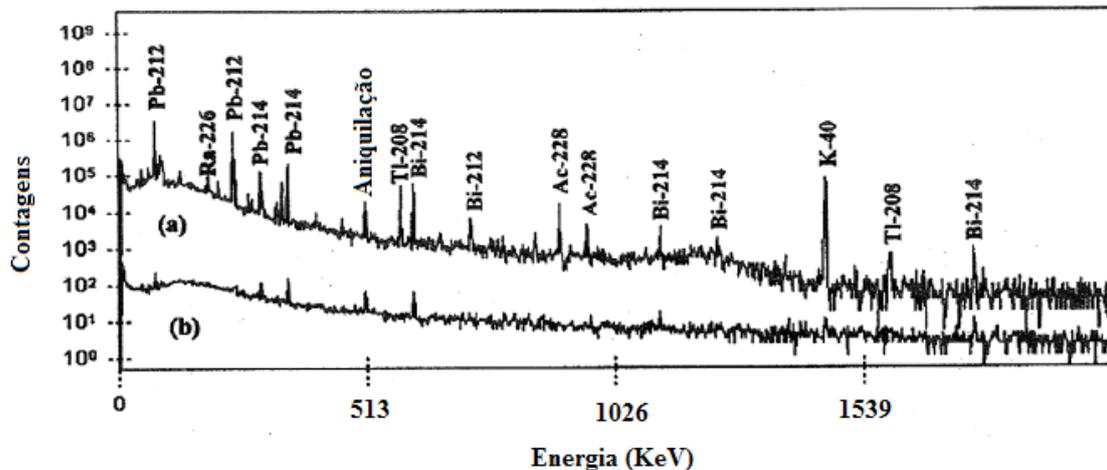


Figura 12 – Comparação entre os espectros: a) Uma amostra aleatória; b) Radiação de fundo do sistema (Modificado de AKRAM et al, 2006)

3.3.2 Análise por Ativação Neutrônica

A técnica de ativação neutrônica foi aplicada no Laboratório de Ativação Neutrônica, Serviço de Reator e Técnicas Analíticas do CDTN/CNEN.

Foram aplicados dois métodos: Ativação neutrônica instrumental relativa (ANIR) na determinação de tório e nêutrons retardados de fissão (ANRF) na determinação de urânio. Em ambos os casos foi utilizado o reator nuclear de pesquisa TRIGA MARK I IPR-R1 a 100 kW de potência.

3.3.2.1 Determinação de ^{232}Th

Na análise por ativação neutrônica relativa (ANIR) as amostras e padrões foram irradiados na mesa giratória sob um fluxo médio ($6,6 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) de nêutrons térmicos por duas horas. Este tempo é o suficiente para produzir ^{233}Th , cuja meia-vida é de 22,4 minutos e seus principais raios gamas são: 86,6, 162,3, 169,3, 459,2 keV, reação (n, γ). Depois da emissão de uma partícula β^- , há a formação do ^{233}Pa , cuja meia-vida é de 27 dias e seus principais raios gamas são: 299,9(15%), 311,8(100%), 340,3(4%) keV. Foram irradiados em paralelo às amostras, padrões líquidos de tório (Menezes, *et al.*, 1999).

Devido a essas características nucleares o ^{232}Th foi determinado pela medida do ^{233}Pa (ADLOFF *et al.* 1993), depois dos decaimentos de meia-vida curta e média depois de 10 dias as amostras e padrões foram medidas por tempo suficiente para uma boa estatística de contagem a mesma distância amostra-detector. Essa medida seguiu os procedimentos básicos para realização da espectrometria contudo, o detector de HPGe utilizado é de 15% de eficiência relativa e resolução de 1,66 keV para o raio gama de 1.332,5 keV do ^{60}Co . Para aquisição de dados foi utilizado o software *Genie 2000 – Gamma Acquisition & Analysis*, da *Canberra* para análise do espectro (MENEZES & SABINO, 1999). A Figura 13 mostra um espectro gama de uma amostra, obtido após a irradiação com nêutrons térmicos, utilizada para a determinação do ^{232}Th . O cálculo de concentração foi efetuado por regressão linear, baseando-se na concentrações de tório nos padrões.

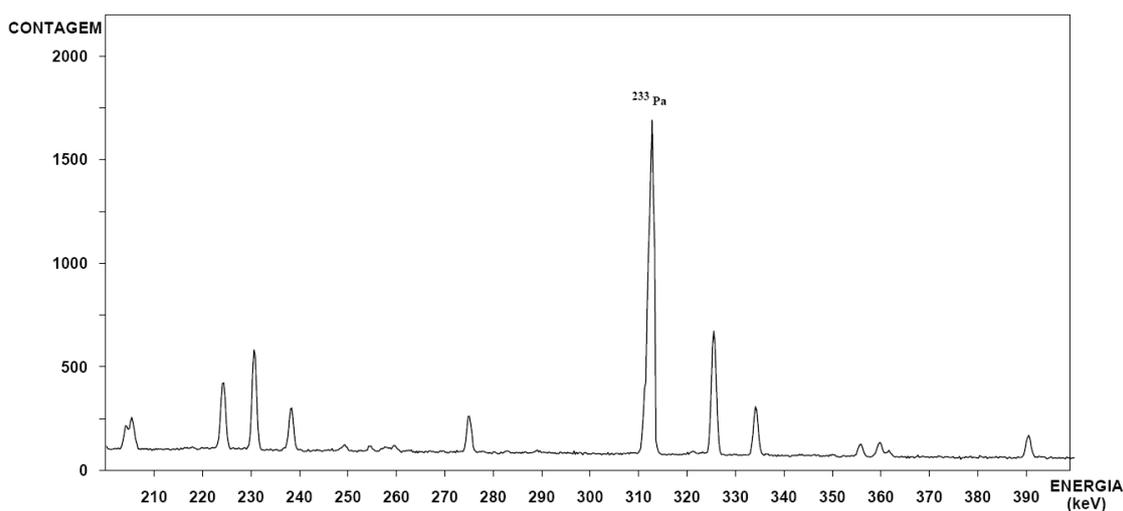


Figura 13 – Espectro gama mostrando o fotopico do ^{233}Pa de uma amostra irradiada com nêutrons térmicos para determinação da concentração de ^{232}Th .

3.3.2.2 Determinação do ^{238}U

A análise de ^{238}U foi realizada pelo método de nêutrons retardados de fissão (ANRF). Para isso foi utilizado um sistema pneumático de análise por NRF, do CDTN, único no país. Esse sistema transfere rapidamente as amostras para o reator e de volta para o detector de nêutrons. O tempo usual de irradiação é de 50 segundos sob um fluxo de nêutrons térmicos de $1,8 \times 10^{11} \text{ n.cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ após o tempo de decaimento de 30 segundos a medida gastosa é realizada por 40 segundos. Isso significa que enquanto uma

amostra é irradiada, a outra fica em espera enquanto a outra é contada. Os nêutrons atrasados são contados em um sistema de contagem composto por um detector BF₃ e um moderador de parafina (SILVA, 2007).

O detector típico de BF₃ contendo geometria cilíndrica, de alumínio ou cobre preenchido com BF₃ e enriquecido com ¹⁰B, gasoso, a 0,5-1,0 atm de pressão. A reação que ocorre é representada pela Equação 28:



Quando um nêutron térmico é absorvido pelo ¹⁰B do gás, uma partícula α e um átomo de ⁷Li são produzidos e se deslocam em direções opostas. Este movimento gera, dentro da câmara proporcional, pares de íons que originam o pulso elétrico a ser registrado pela eletrônica associada (FRAME, 2004).

Quando uma amostra composta de urânio natural é irradiada, o número de fissões e, conseqüentemente, o fluxo de nêutrons retardados é proporcional à quantidade de urânio na amostra. Dessa forma, a concentração de urânio total é calculada com base na contagem do ²³⁵U. Uma regressão linear é usada para os cálculos baseando-se nos padrões de urânio que são analisados em paralelo às amostras (SILVA, 2007).

3.3.3 Validaçãodos Métodos

Tanto o métodos de Espectrometria Gama aplicado na determinação de ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ⁴⁰K, no Laboratório de Trítio, como os métodos de Ativação Neutrônica Instrumental Relativa – determinação de ²³²Th e de Nêutrons Retardados de Fissão – determinação do ²³⁸U, no laboratório de Ativação Neutrônica são validados. Os dois laboratórios participam do Programa Nacional de Intercomparação de Resultados com o Instituto de radioproteção

Validar um método é o processo de demonstrar que a seqüência analítica adotada é capaz de produzir resultados confiáveis e reprodutíveis. Dessa forma, um método analítico deve ser submetido a estudos laboratoriais que demonstrem que o mesmo atenda às exigências requeridas pelo tipo de determinação a que se destina.

Para garantir a qualidade dos resultados, todos os fatores que de alguma forma influenciem nas etapas intermediárias do processo devem ser controlados, tais como: *background*, verificação da calibração de balanças, do equipamento a ser utilizado nas análises e fontes radioativas de calibração devidamente certificadas. Além disso, o laboratório de Trítio participa de um programa nacional de intercomparações juntamente com Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD/CNEN, de onde foram fornecidas as fontes para calibração.

3.4 MCNP-5

O MCNP-5 é um programa adequado para modelar a resposta do detector, pois contém um registro F8 específico que permite determinar a altura dos pulsos registrados no detector por partícula emitida de uma determinada fonte, com isso, é possível determinar a eficiência absoluta para cada pico do espectro. Neste modelo é incluído um cartão com a opção GEB (Gaussian Energy Broadening) que aproxima os picos a uma função gaussiana, permitindo obter uma melhor simulação do espectro.

Foi considerado como geometria de medida um recipiente Marinelli de 500 mL cheio de água com uma quantidade apropriada para calibração com os radionuclídeos ^{133}Ba , ^{60}Co e ^{134}Cs . Assim como experimentalmente feito, foram consideradas as energias de 81, 276, 303, 356 e 384 keV do ^{133}Ba com as frequências de 33%, 7,3%, 18,6% 62,3% e 8,9% respectivamente 1173,2 e 1332,5 keV do ^{60}Co com as frequências de 100% cada uma e finalmente as energias 604,7 e 795,8 do ^{134}Cs com as frequências de 97,6% e 85,4% respectivamente. A Figura 14 mostra a geometria utilizada na simulação, obtida pelo código MCNP-5.

É válido ressaltar que todas as dimensões são correspondentes ao do sistema original. Na Tabela 11 são apresentadas as dimensões e densidades dos componentes do detector. O modelo geométrico do detector baseou-se nas informações fornecidas pelo fabricante. Entretanto, não foram considerados alguns detalhes tais como: sistema eletrônico e a distinção entre as camadas; ativa e inativa do cristal de germânio. A Figura 15 mostra a visão em secção transversal do detector de germânio utilizado na pesquisa.

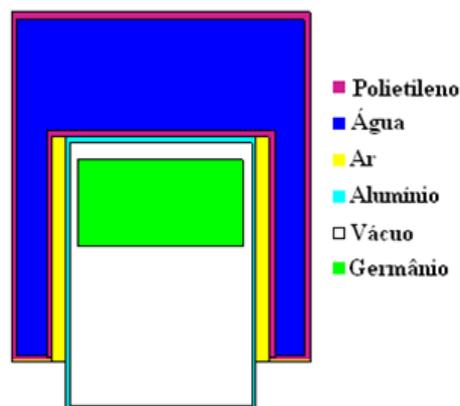


Figura 14 – Esquema da geometria, definida no MCNP-5, do Marinelli Beaker sobre o detector de HPGe e os materiais correspondentes.

Tabela 11 – Dimensões do detector HPGe fornecida pelo fabricante (CANBERRA, 1999)

Componente	Densidade (g cm ⁻³)	Dimensão
Diâmetro do núcleo	0,00	0,85 cm
Altura do núcleo	0,00	4,40 cm
Diâmetro do cristal de Ge	5,32	6,1 cm
Altura do cristal de Ge	5,32	2,55 cm
Suporte do cristal (Al)	2,70	0,76 mm
Vácuo	0,00	3,50 mm
Criostato (Al)	2,70	1,50 mm

Foi considerado um modelo de física detalhado, incluindo o efeito fotoelétrico com produção de fluorescência e produção de pares, no intervalo de energia entre 0,001 e 1,5 MeV. Embora a simulação das trajetórias dos elétrons requeira um elevado tempo de cálculo, ela foi considerada devido a sua influência na formação do espectro. Para diminuir o tempo de cálculo, foi empregado um cartão de corte de energia: 30 keV para o transporte de elétrons e 1 keV para fótons. O número de partículas foi estabelecido em 10^8 com o objetivo de obter um erro relativo menor do que 1 % para cada centroide dos picos do espectro.

O registro F8 junto à opção GEB do programa MCNP permitem obter um espectro comparável com o experimental. Os parâmetros do cartão GEB foram determinados

para reproduzir a calibração real em resolução (FWHM) do detector. No anexo 1 é apresentado o *input* do sistema com a adição dos cartões e registro F8.

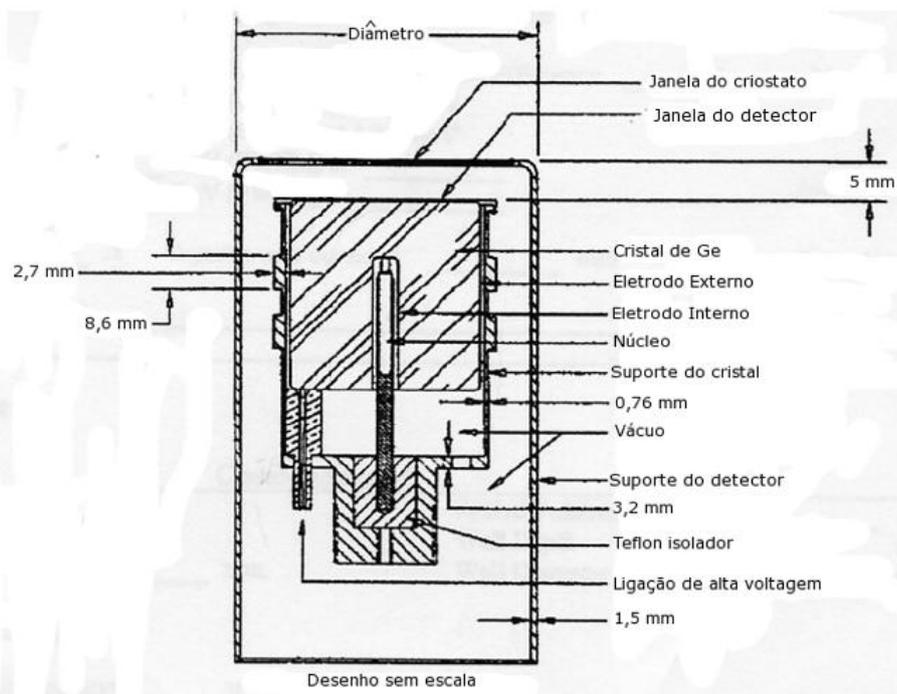


Figura 15 – Aspecto em secção transversal do detector de germânio, (modificado de CANBERRA, 1999)

O *output*, por sua vez, é a resposta probabilística do modelamento para cada fóton emitido pela fonte que interage com o meio. Com o valor da fluência gama total obtida experimentalmente, a partir da amostra padrão, o tempo considerado para calibração e a probabilidade de emissão de cada fóton foi possível plotar o espectro energético teórico. Para exemplificar, podemos tomar como base o fotopico de 81 keV do radionuclídeo ^{133}Ba , o *output* apresenta os valores da detecção para cada 1 fóton da faixa de energia considerada, a esses valores de cada ponto da gaussiana foi multiplicado pelo valor da fluência gama total. A partir do pico centróide de 81 keV, consideramos os mesmos ROIs (Regions of Interesse) do tratamento experimental para delimitar o fotopico (as energias de 76,6 e 82 keV foram os ROIs para o fotopico em exemplo). Os valores espectrais foram plotados em um programa de tratamento de dados (OriginPro 8) e foram calculados a área líquida como a área integral da função gaussiana, uma vez que não é simulado o *background* do ambiente. Por fim, a determinação das eficiências

absolutas para cada fotopico foram obtidas a partir da área integral calculada usando a mesma Equação 19 usada na medida experimental.

Para a comparação das eficiências medidas e calculadas, foi aplicado um método de propagação de erros, considerando uma distribuição normal com $K=2$ o que proporciona um nível de confiança de 95%.

A partir dos resultados experimentais foram obtidos os valores de ajuste da eficiência para cada energia usando a função de ajuste dos mínimos quadrados semi-empírica, segundo a Equação 20 (DEBERTIN & HELMER, 2000 *apud* EWA, et al., 2001):

$$\log \varepsilon = \sum_{j=0}^n a_j (\log E/E_0)^j \quad (20)$$

onde, ε é a eficiência do fotopico, a_j são as constantes e E_0 é um valor fixo de 1 keV, para que dessa forma o valor de E (com energia em keV) seja adimensional.

3.5 Índices de Risco da Radiação Gama

A atividade equivalente do rádio (Ra_{eq} , *radium equivalent activity*), foi calculada de acordo com BERETKA & MATHEW (1985) com a Equação 29:

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1,43A_{Th} + 0,077A_K \quad (29)$$

onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K são atividades específicas do ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em Bq kg^{-1} , respectivamente.

O índice de dano externo (*external hazard index - H_{ex}*), como dito anteriormente, é obtido a partir da expressão da Ra_{eq} através da suposição de que seu máximo valor permitido corresponde ao valor limite da Ra_{eq} (370 Bq kg^{-1}). Esse valor deve ser menor do que uma unidade de modo que o dano da radiação seja insignificante; essa exposição devido a radioatividade dos materiais de construção não devem ultrapassar o limite de $1,5 \text{ mSv a}^{-1}$ conforme recomendado pelo *International Commission on Radiological Protection* (ICRP, 1977) e adotado por alguns autores (AHMED, 2005; LU *et al.*,

2008), apesar de outros autores, como VEIGA *et al.*, (2006), utilizar o limite de 1,0 mSv a⁻¹, optamos por utilizar o primeiro para fins de comparações. Então, o índice de dano externo pode ser definido como mostra a Equação 30:

$$H_{ex} = A_{Ra}/370 + A_{Th}/259 + A_K/4.810 \quad (30)$$

onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K são as atividades específicas do ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K em Bq kg⁻¹, respectivamente. HEWAMANNA *et al.* (2001) corrigiu esse modelo definido acima, depois de considerar uma espessura finita para parede de uma residência e a existência de portas e janelas. Levando em conta essas considerações, a equação corrigida para o cálculo é apresentada na Equação 31:

$$H_{ex} = A_{Ra}/740 + A_{Th}/520 + A_K/9.620 \quad (31)$$

A exposição interna para o radônio e seus filhos que é quantificada pelo índice de risco interno H_{in} (*Internal Hazard Index*) é dada pela Equação 32 (AHMED, 2005):

$$H_{in} = A_{Ra}/185 + A_{Th}/259 + A_K/4.810 \quad (32)$$

onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K são as atividades específicas do ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K, respectivamente, em Bq kg⁻¹. Para a utilização com segurança de um material na construção civil o H_{in} não deve ser maior do que 1,0 Bq kg⁻¹.

O índice de nível representativo (*Representative Level Index*), I_{yr} , usado para estimar o nível de risco da radiação gama associada com o radionuclídeo natural em material para construção é definido na Equação 33 (HIGGY, 2000) :

$$I_{yr} = \left(\frac{1}{150}\right)A_{Ra} + \left(\frac{1}{100}\right)A_{Th} + \left(\frac{1}{1.500}\right)A_K \quad (33)$$

onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K são as atividades específicas em Bq kg⁻¹ do ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K, respectivamente. O limite aceitável para esse índice é de 1 Bq kg⁻¹ (LU, *et al.*, 2008).

3.6 Cálculo de doses

A taxa de dose absorvida no ar a 1 m foi determinada utilizando a Equação 34 (UNSCEAR 2000; VEIGA *et al.*, 2006 e LU 2008):

$$D(\text{nGy h}^{-1}) = 0,0417A_{\text{K}} + 0,462A_{\text{Ra}} + 0,604A_{\text{Th}} \quad (34)$$

onde A_{K} , A_{Ra} e A_{Th} são as atividades específicas do ^{40}K , ^{226}Ra e ^{232}Th em Bq kg^{-1} , respectivamente.

Para estimar a taxa de dose efetiva anual foram utilizados: a taxa de dose absorvida no ar a 1 m convertida para dose efetiva. Dessa maneira a taxa de dose efetiva anual (H_{E}) foi calculada segundo a Equação 35.

$$H_{\text{Eout}} = DTF \quad (35)$$

onde D é a taxa de dose calculada (em nGy h^{-1}) na Equação 34, T é o tempo de exposição no ambiente ($24 \text{ h} \times 365,25 \text{ dias} \times \text{FO}$), FO é o fator de ocupação definido por RAMLI, *et al.*, (2009) onde é usado 0,74 para exposições *indoor* e 0,26 para exposições *outdoor*, e F é o fator de conversão de unidade definido pela UNSCEAR (2000) de $0,7 \text{ Sv Gy}^{-1}$. O valor de FO utilizado para calcular o H_{E} foi de 0,26, pois se trata de um ambiente externo.

Capítulo 4 – Resultados e Discussões

4.1 Eficiência obtida utilizando o código MCNP-5

Os valores dos FWHM e suas energias correspondentes que expressam a Função 13, apresentada no capítulo 3 estão apresentados na Tabela 12. Esses dados foram obtidos experimentalmente e extraídos do programa Genie 2000.

Tabela 12 – Valores do FWHM para cada energia e seu pico centróide

Pico centróide	Energia (keV)	FWHM (keV)
17,59	25,38	4,01
52,55	52,35	1,41
88,12	79,79	1,21
190,81	159,03	1,44
271,85	221,56	1,23
340,79	274,75	1,56
375,05	301,18	1,51
443,96	354,36	1,65
480,01	382,17	1,7
548,59	435,09	1,75
598,65	473,71	2,6
712,57	561,61	1,99
720,50	567,72	2
766,40	603,15	2,15
840,26	660,14	2,23
1014,41	794,5	2,56
1022,23	800,54	2,57
1503,93	1172,21	3
1710,60	1331,67	3,36
1752,89	1364,31	2,81

As constantes “a”, “b” e “c” da Equação 17, que foram utilizados na opção GEB do arquivo de entrada do MCNP5 estão representados na Tabela 13.

Tabela 13 – Coeficientes utilizados na opção GEB do INPUT

Coeficiente	a	b	c
Valores	0,000209	0,002578	0,0

A Figura 16 mostra a curva de eficiência absoluta em função da energia experimental e teórica para 9 picos estudados. A eficiência do detector varia de acordo com a energia do fóton incidente e interações com o seu volume ativo. Para fótons de baixas energias (81 e 276,4 keV) a resposta da simulação com Monte Carlo não há concordância com os dados experimentais. Isso se deve ao fato de que tanto a camada inativa do detector de HPGe quanto o seu suporte de alumínio, criostato, estejam atenuando esses fótons de baixas energias, além do fato de que este modelo de detector não seja o ideal para medir baixas energias. Entretanto, há uma boa concordância a partir do ponto 302,9 keV para essas curvas. Esse comportamento também foi obtido e discutido por EWA *et al.* (2001). É válido informar que o volume da camada inativa de germânio do detector não foi fornecida pelo fabricante.

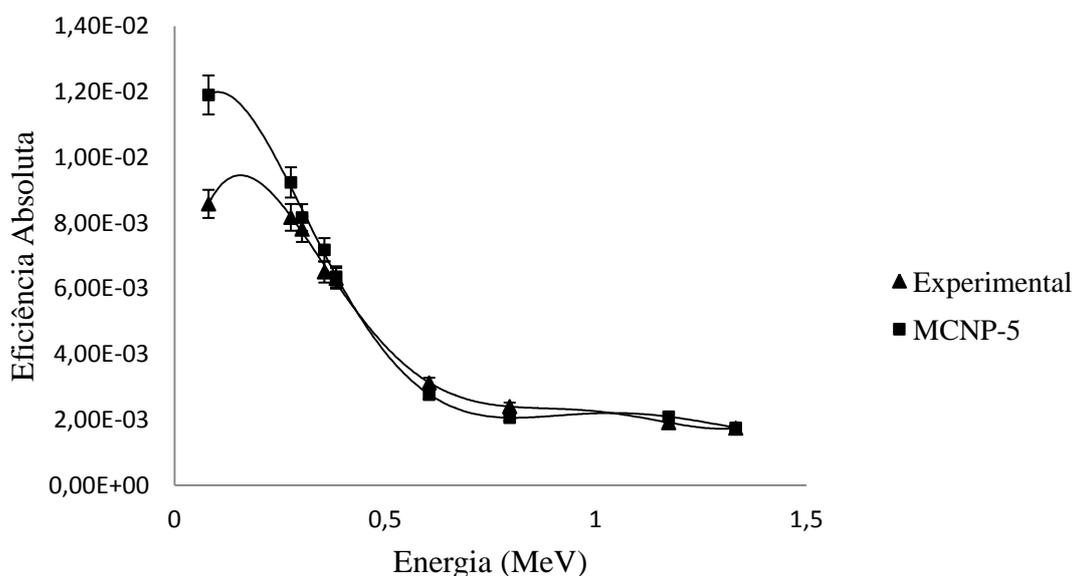


Figura 16 – Curvas de eficiência do detector de HPGe experimental e teórica

Com a observação da Figura 16, pode-se deduzir que as eficiências calculadas (MCNP-5) são ligeiramente superiores às experimentais. Com desvios menores do que 5% quando se leva em consideração energias superiores a 300 keV. Conseqüentemente, o modelo desenvolvido com o MCNP-5 é uma boa aproximação da calibração experimental para energias superiores a 300 KeV. Essa amplitude ainda é maior quando se há conhecimento do volume da camada inativa do detector estudado. Uma solução para uma medida mais confiável está apresentada na Figura 17, onde foi excluído o ponto de 81 keV com a finalidade de utilizar a função de ajuste para as medidas experimentais. Entretanto para utilizar essa função deve-se trabalhar apenas com fotopicos acima de 300 keV.

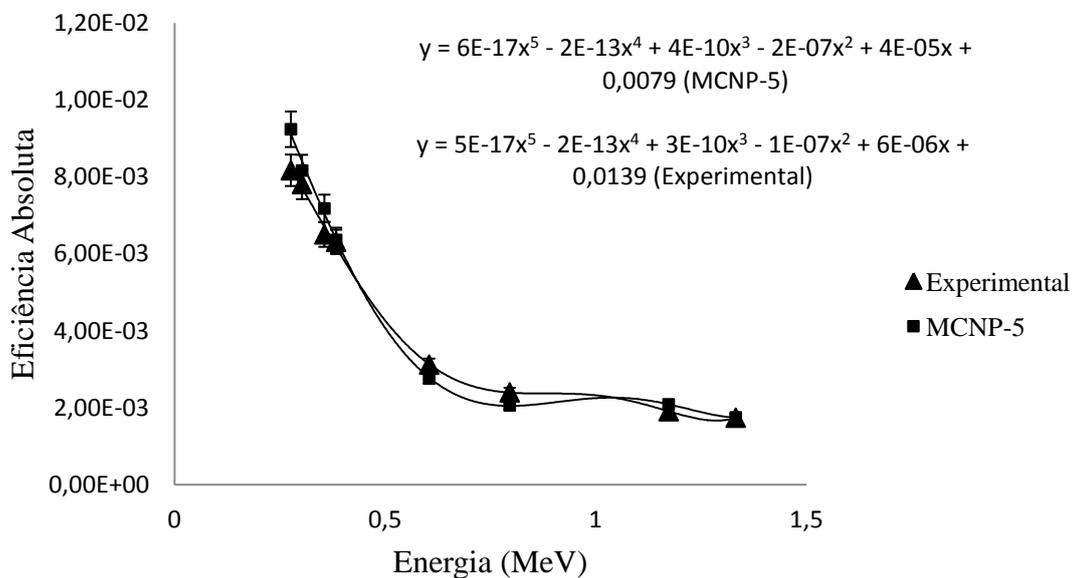


Figura 17 – Curvas de eficiência do detector de HPGe experimental e teórica com a exclusão do ponto de baixa energia (81 keV).

Outra alternativa foi determinar duas funções semi-empíricas com suas constantes correspondentes para as faixas de energia de 81-383,9 keV e 383,9-1332,5 keV como é apresentado na Tabela 14, pois o uso de apenas uma curva polinomial para toda faixa de energia é inadequado, já que as curvas para baixa e altas energias não possuem comportamentos similares (EWA *et al*, 2001). Uma excelente discussão da base física dos fotopicos de diversos detectores de germânio, função de ajuste da eficiência e sobre a curva de ajuste matemática podem ser encontradas no livro dos autores DEBERTIN & HELMER (1988).

Tabela 14 – Coeficientes de ajuste da função da eficiência semi-empírica obtidos para faixas de energias.

Constantes	Energia (keV)	
	(81-383,9)	(383,9-1332,5)
a ₀	22,89	65,308
a ₁	34,793	-65,686
a ₂	16,105	21,329
a ₃	-2,4763	-2,3295
Coeficiente de Regressão (r ²)	0,974	0,9998

Quando se estabelecem essas funções, é possível determinar os valores de ajuste da eficiência. A Tabela 15 apresenta os resultados das eficiências obtidas: experimentalmente usando as fontes padrões, pelo código MCNP-5 e os valores ajustados. Nesta tabela são apresentados também, as relações entre esses valores.

A qualidade dos dados experimentais em relação aos valores semi-empíricos ajustados pode ser melhor visualizada na Figura 18, onde essa relação é apresentada em função da energia. Pode-se perceber que as relações não mostram uma estabilidade na marca de uma unidade, mas sim uma oscilação entre valores mínimos e máximos e não apresentam um comportamento dependente da energia, seja ela baixa ou alta. Segundo DEBERTIN & HELMER (1988) esse comportamento é característicos de detectores de Ge de portes médios e grandes. Este ajuste pode, também, confirmar que o uso de uma única função polinomial é inadequada para representar a complexa função de ajuste da eficiência do detector em função da faixa de energia (81-1332,2 keV) estudada (EWA *et al*, 2001).

Tabela 15 – Valores das eficiências calculadas experimentalmente, por MCNP-5 e ajustadas para o detector de HPGe utilizado na pesquisa

Energia(keV)	Valores das Eficiências		Valor de ajuste	Relações das Eficiências		Desvios (%) dos dados experimentais em relação aos simulados
	Experimental	MCNP-5		Experimental	MCNP-5	
81	0,008581	0,011904	0,008591	0,99	1,39	-10,7
256,4	0,008171	0,009237	0,008253	0,99	1,13	9,1
302,9	0,007812	0,008165	0,007652	1,02	1,05	5,0
356	0,006506	0,007179	0,006741	0,96	1,10	-4,5
383,9	0,006311	0,006360	0,006219	1,02	1,01	3,8
604,7	0,003121	0,002761	0,003083	1,02	0,89	1,0
795,8	0,002399	0,002058	0,002402	0,99	0,86	1,2
1173,2	0,001908	0,002088	0,001876	1,02	1,09	1,6
1332,5	0,001741	0,001749	0,001736	1,00	1,01	0,7

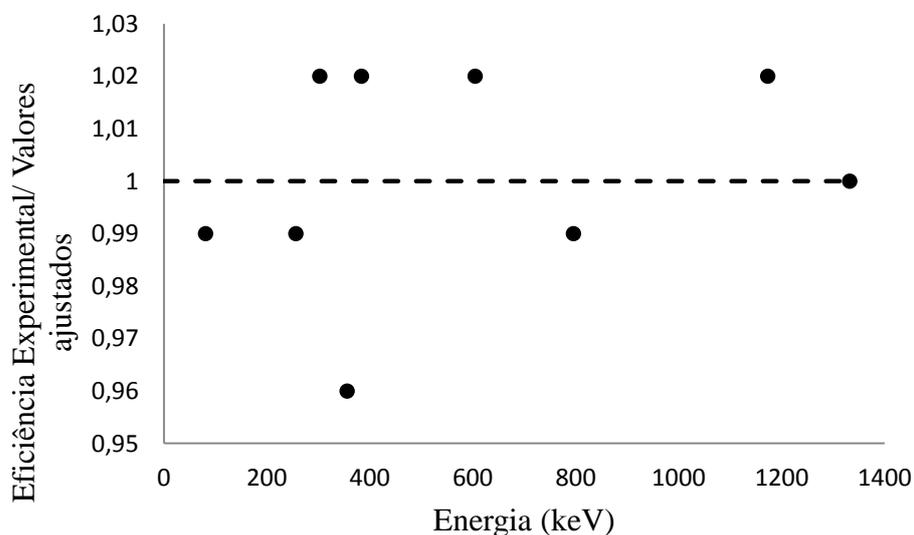


Figura 18 – Comparação entre as relações das eficiências experimental e os valores ajustados para a faixa de energia investigada.

4.2 Limites de Detecção e Quantificação

Na Tabela 16 são apresentados os limites de detecção e quantificação para cada radionuclídeo determinado pelas técnicas de espectrometria gama e ativação neutrônica (ANIR e ANRF). Foram, também, mencionadas as energias dos picos estudados e a probabilidade de emissão do fóton.

Tabela 16 - Limites de detecção (LD) e de quantificação (LQ) para cada radionuclídeo e suas respectivas técnicas.

Radionuclídeo	LD (Bq kg ⁻¹)	LQ (Bq kg ⁻¹)	Técnica	Energia (keV) – Probabilidade de Emissão
⁴⁰ K	0,5	1,0	EG	1460,8(10,7%)
Família do ²³⁸ U				
²³⁸ U	12,0	25,0	ANRF	
²¹⁴ Bi/ ²²⁶ Ra	0,2	0,4	EG	609,3(46,3%) 242,0; 295,2;
²¹⁴ Pb	0,1	0,2	EG	351,9(7,4%;19,3%; 37,6%)
Família do ²³² Th				
²³² Th	4,0	8,0	ANIR	312,0* (100%) 338,3; 911,6;
²²⁸ Ac/ ²²⁸ Ra	0,2	0,4	EG	968,2 (11,4%; 27,7%; 16,6%)
²¹² Pb/ ²²⁴ Ra	0,2	0,4	EG	238,6(44,6%)

*Fotopico proveniente do ²³³Pa

4.3 Determinação das concentrações de Urânio e Tório

Devido ao fato da ativação neutrônica ser uma técnica bem estabelecida e apresentar resultados com precisão e exatidão, esta foi tomada, como referência para comparação dos valores do ²³²Th obtidos pela técnica de espectrometria gama. Assim como, a ANRF para os valores do ²³⁸U comparada com a mesma técnica. Dessa forma, apenas os resultados da ativação neutrônica foi considerada para os radionuclídeos ²³⁸U e ²³²Th respectivamente. Além do mais, a emissão gama do ²³²Th é de 63,8 keV, faixa de

energia gama não adequada para o detector HPGe disponível. O mesmo acontece para o ^{238}U .

É importante ressaltar que as concentrações obtidas por estas técnicas foram transformadas em atividades, de modo que $1,0 \mu\text{g g}^{-1}$ de ^{238}U e ^{232}Th correspondem a 12 Bq kg^{-1} e 4 Bq kg^{-1} , respectivamente.

As atividades específicas do ^{232}Th e ^{238}U nas areias dos locais em estudo na primeira e segunda baterias de coletas estão apresentadas na Tabela 17. O termo Cumuruxatiba B foi usado para representar a areia não escura do local enquanto que Cumuruxatiba P foi utilizado para representar a areia preta.

Tabela 17 – Valores das atividades específicas do ^{238}U e ^{232}Th (Bq kg^{-1}) obtidas nas amostras superficiais das areias de praias, usando os métodos ANIR e ANRF.

Radionuclídeos	^{238}U				^{232}Th			
	coleta 1	coleta 2	coleta 3	média	coleta 1	coleta 2	coleta 3	média
Locais								
Arraial D'Ajuda	<25	<25	25±12	16	41±4	41±4	49±4	44
Porto Seguro	<25	<25	<25	<25	21±2	29±4	21±2	23
Trancoso	25±12	<25	49±12	29	168±12	37±4	299±16	168
Caraíva	49±12	49±12	25±12	41	295±16	238±16	139±8	224
Cumuruxatiba B	281±36	281±36	269±36	277	1435±82	1230±82	1271±82	1312
Cumuruxatiba P	2984±146	2935±146	3082±159	3000	18450±820	17630±820	17220±820	17767
Prado	<25	<25	<25	<25	26±2	29±4	26±2	27
Alcobaça	86±7	86±7	86±7	86	406±21	357±25	332±16	365
Caravelas	<25	25±12	<25	16	30±2	45±4	49±4	41
Média mundial (UNSCEAR, 2000)	35				30			

Como são mostradas na Tabela 17, as atividades dos radionuclídeos nas amostras são bem diferentes em alguns lugares. As atividades específicas do ^{238}U e ^{232}Th nas areias coletadas em Cumuruxatiba P, Cumuruxatiba B e Alcobaça são maiores do que nos demais locais. O motivo pelo qual as amostras de Cumuruxatiba apresentam altas atividades mais elevadas pode ser devido à presença de monazita. Pode-se também observar que as concentrações são maiores nas areias escuras (Cumuruxatiba P) do que nas não-escuras (Cumuruxatiba B), o que reforça a possibilidade de que essas areias sejam monazíticas.

As menores atividades do ^{238}U foram observadas em Porto Seguro e Prado (média de $< 25 \text{ Bq kg}^{-1}$) e as maiores atividades foram encontradas nas areias escuras de Cumuruxatiba (média de 3000 Bq kg^{-1}) como também em suas areias brancas (média de 277 Bq kg^{-1}). Similarmente, os menores e os maiores níveis de ^{232}Th foram encontrados em Porto Seguro e Prado (médias de 23 e 27 Bq kg^{-1}) e Cumuruxatiba B e P (médias de 1.312 e $17.767 \text{ Bq kg}^{-1}$) respectivamente.

Ainda na Tabela 17, são mostrados os valores médios mundial no solo para o ^{238}U e ^{232}Th (UNSCEAR, 2000). As atividades específicas do ^{232}Th nas amostras coletadas em Arraial D'Ajuda, Acobaça, Trancoso, Caraíva, Caravelas e Cumuruxatiba são maiores do que o valor médio mundial que é de 30 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2000). Em contrapartida, as atividades específicas do ^{238}U em Arraial D'Ajuda, Prado, Porto Seguro, Trancoso e Caravelas são menores do que o valor médio mundial que é de 35 Bq kg^{-1} . Nos demais locais esses valores são maiores.

O valor médio de Cumuruxatiba P é 86 vezes maior do que a média mundial para o ^{238}U é cerca de 600 vezes maior para o ^{232}Th . As amostras de Cumuruxatiba B também são maiores, cerca de 8 vezes maior para o ^{238}U e de 44 vezes para o ^{232}Th . O que demonstra que essas areias são ricas em mineral de urânio e tório. Alcobaça, por sua vez, teve valores acima da média mundial mais discretos, cerca de 2 vezes acima para o radioisótopo do ^{238}U e cerca de 12 vezes para o ^{232}Th .

4.4 Determinação das Atividades do ^{226}Ra , ^{228}Ac e ^{40}K

As atividades específicas dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ac e ^{40}K medidas nas amostras de areias de praia do extremo sul da Bahia estão apresentadas na Tabela 18. A ocorrência natural dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ac e ^{40}K nas amostras estão na faixa de 8,4-8318; 19-40484 e 3,4-3109 Bq kg^{-1} , com valor médio de 948; 4306 e 335 Bq kg^{-1} respectivamente.

Como se pode ver ainda na Tabela 18, os valores das atividades específicas do ^{226}Ra são maiores do que a média mundial estabelecida pela UNSCEAR (2000), que é de 35 Bq kg^{-1} exceto em Porto Seguro e Caravelas. Não há na literatura um valor médio mundial

para o ^{228}Ac em areia ou solos. Contudo, as médias em Cumuruxatiba (P e B) e Alcobaça são mais elevadas do que nos demais locais estudados. E, por fim, os valores médios do ^{40}K em Cumuruxatiba também foram maiores do que a média mundial que corresponde a 400 Bq kg^{-1} (UNSCEAR, 2000).

Tabela 18 – Atividades específicas (média±SD), em Bq kg^{-1} , dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ac e ^{40}K nos locais de estudo

Radionuclídeos	^{226}Ra	^{228}Ac	^{40}K
Locais			
Arraial D'Ajuda	[28-144] 74±62	[108-840]405±385	[15-46] 27±16
Porto Seguro	[8,4-17] 14±5	[23-47]39±13	[3,4-19] 10±8
Trancoso	[14-91] 55,9±39	[40-436]239±198	[10,7-42] 26±16
Caraíva	[39-64] 43,5±13	[175-252]212±39	[18-44] 30±13
Cumuruxatiba B	[200-233] 222±19	[960-999]985±90	[71-73] 71±1
Cumuruxatiba P	[7049-8318] 7814±674	[31096-40484]35602±4705	[2216-3109] 2652±447
Prado	[15-105] 45±53	[43-561]215±299	[17-64] 32±27
Alcobaça	[81-510] 224±80	[315-2378]1003±1191	[41-182] 88±82
Caravelas	[8,7-38] 24±13	[19-76]52±29	[69-94] 80±13
Média mundial (UNSCEAR, 2000)	35	Não determinada	400

4.5 Cálculos das doses, dos índices de risco da radiação gama e da Posição Regulatória da CNEN

Os resultados obtidos para a atividade equivalente do rádio (Ra_{eq}), o índice de nível representativo (I_{yr}), os índices de riscos externo e interno (H_{ex} e H_{in}) avaliados nas amostras de areia estão representadas na Tabela 19. Os valores da Ra_{eq} , I_{yr} , H_{ex} e H_{in} em Alcobaça, Caraíva e nas areias escuras e claras de Cumuruxatiba são maiores do que os limites aceitáveis que são de: 370 Bq kg^{-1} e $1,0 \text{ Bq kg}^{-1}$ (UNSCEAR, 2000; EL-ARABI, 2005). Quando mediu-se o índice de risco externo corrigido conforme recomendado por HEWAMANNA *et al.* (2001) apenas Alcobaça e Cumuruxatiba obtiveram valores acima do limite de $1,0 \text{ Bq kg}^{-1}$, uma média discreta em Alcobaça ($1,0 \text{ Bq kg}^{-1}$) e valores médios bastante elevados em Cumuruxatiba ($2,8 \text{ Bq kg}^{-1}$ nas areias claras e $34,5 \text{ Bq kg}^{-1}$ nas areias escuras). Em Trancoso o único índice que foi excedido foi o I_{yr} . De um modo geral apenas as areias de Alcobaça, Cumuruxatiba e Caraíva não são seguras para sua utilização como material de construção. Embora não seja adequado, o uso dessas areias

de praias como material de construção é comum na região, principalmente no uso da construção de casas ribeirinhas.

Tabela 19 – Índices de riscos da radiação gama nas amostras de areia coletadas no extremo sul da Bahia (mínimo-máximo)média

Local	Índice de danos da radiação gama				
	Ra _{eq} (Bq kg ⁻¹)	I _{yr} (Bq kg ⁻¹)	H _{ex}	H _{ex} (corrigido)	H _{in}
Arraial D'Ajuda	(88-218)	(0,6- 1,5)	(0,2-0,6)	(0,1-0,29)	(0,3-0,9)
	138	0,9	0,4	0,18	0,5
Prado	(53-145)	(0,4-0,9)	(0,1-0,4)	(0,07-0,19)	(0,1-0,6)
	85	0,6	0,2	0,11	0,351
Alcobaça	(594-997)	(4,1-6,8)	(1,6-2,7)	(0,8-1,3)	(1,8-4,0)
	752	5,2	2,0	1,0	2,6
Porto Seguro	(46-50)	(0,3-0,4)	(0,12-0,13)	(0,06-0,07)	(0,16-0,17)
	48	0,3	0,12	0,06	0,16
Trancoso	(117- 443)	(0,8- 3,1)	(0,3- 1,2)	(0,1-0,6)	(0,4-1,2)
	298	2,0	0,8	0,4	0,9
Caraíva	(265- 463)	(1,8-3,2)	(0,7- 1,2)	(0,3-0,6)	(0,8- 1,3)
	373	2,6	1,0	0,502	1,1
Caravelas	(78-100)	(0,5-0,7)	(0,21-0,27)	(0,11-0,13)	(0,2-0,3)
	88	0,6	0,24	0,12	0,3
Cumuruxatiba P	(32.855-33.747)	(69-233)	(27,8-90)	(14-45)	(50-110)
	33.406	177	69	34	90
Cumuruxatiba B	(1.997-2.290)	(13,9-16)	(5,4-6,1)	(2,7-3,0)	(6,0-6,8)
	2.114	14,7	5,7	2,9	6,3

Valores em negrito representam risco na utilização do material na construção civil

A Figura 19 mostra os valores de cada ponto de coleta obtidos a partir da Equação 12, conforme sugerido pela posição regulatória 3.01/001 da CNEN que é a única norma vigente em território nacional. Os valores em todos os pontos de coleta são inferiores a um.

Dessa forma, é possível que a areia de todas as localidades sejam de alguma forma comercializada a um determinado consumidor, uma vez que, apenas uma tonelada desse material seja fornecida. Esse resultado nos levou a sugerir uma norma nacional que estabeleça níveis de proteção radiológica quanto a exposição a radiação natural de uma determinada NORM, contudo sabe-se que a CNEN que é o órgão orientador e fiscalizador de atividades nucleares no Brasil, estabelece os mesmos limites de dose efetiva no país, por meio da norma CNEN-NN-3.01 (2006) de 1,0 mSv ano⁻¹ para exposição pública.

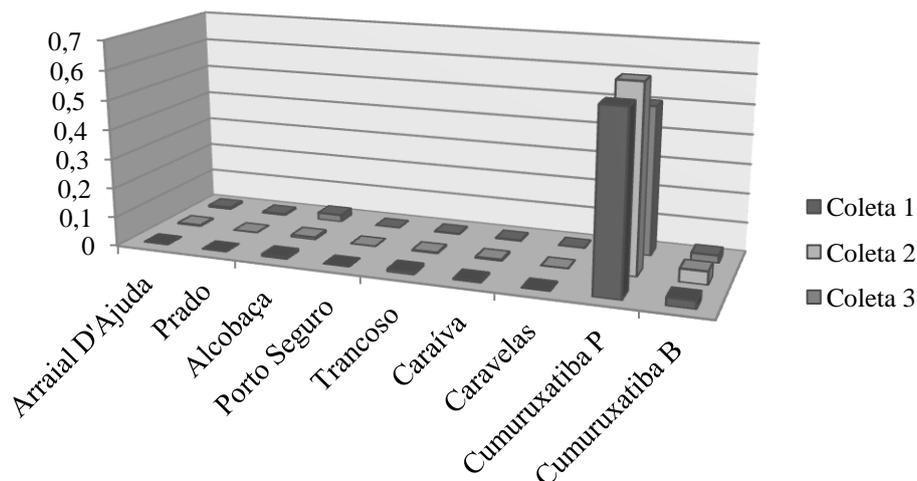


Figura 19 – Dados de cada ponto de coleta referentes a Equação 12 obtida conforme sugere a posição regulatória 3.01/001 da CNEN

A taxa de dose absorvida no ar devido à radiação gama (D), seus valores absolutos e relativos referentes aos radionuclídeos ^{232}Th , ^{226}Ra e ^{40}K nos locais de coleta estão apresentados na Tabela 20. As taxas de dose absorvida variaram de 21 a 14.452 nGy h⁻¹ com valor médio de 1.792 nGy h⁻¹. O maior valor da taxa de dose gama absorvida no ar ao longo das praias estudadas foi encontrado em Cumuruxatiba (15.117 nGy h⁻¹) com média de 14.452 nGy h⁻¹. Na praia da Areia Preta em Guarapari por exemplo já foram encontrado valores na faixa de 90 a 90.000 nGy h⁻¹ (UNSCEAR, 2000; FREITAS & ALENCAR, 2004). MOHANTY *et al.* (2004) chegaram a conclusão de que Orissa na costa leste da Índia é uma HBRA com uma média±SD de 1.925±718 nGy h⁻¹. Os valores médios dessa taxa de dose em Alcobaça e Cumuruxatiba são maiores do que a média estimada primordial global da radiação de 59 nGy h⁻¹ e do que a faixa média mundial (10-200 nGy h⁻¹) (UNSCEAR, 2000).

O maior contribuinte para essa elevada taxa de dose absorvida no ar nas areias de Cumuruxatiba (P e B) e de Alcobaça é o ^{232}Th com cerca de 74,3%, 87,8% e 67,3% respectivamente. O ^{226}Ra contribui com cerca de 25%, 11,9% e 31,6% respectivamente. A contribuição do ^{40}K nessas areias é irrisória, exceto em Cumuruxatiba, pois em valores absolutos a contribuição do ^{40}K é cerca de 111 nGy h⁻¹, o que é um valor muito expressivo, tendo em vista que em muitos lugares no mundo, inclusive em alguns locais em estudo, a taxa de dose absorvida no ar total é inferior a esse valor. Já o maior

contribuinte para essa dose em Arraial D’Ajuda e Prado é o ^{226}Ra com cerca de 55,3% e 54,4% respectivamente. O menor valor da taxa de dose gama absorvida no ar ao longo das praias estudadas foi encontrado em Porto Seguro (21 nGy h⁻¹).

Tabela 20 – Valores relativos e absolutos da taxa de dose absorvida no ar a 1m no locais em estudo para cada radionuclídeo analisado

Local	Taxa de dose absorvida no ar a 1m (nGy h ⁻¹)						Total (100%)
	^{232}Th	%	^{226}Ra	%	^{40}K	%	
Arraial D’Ajuda	26,4	42,8	34,1	55,3	1,1	1,9	62
Porto Seguro	14,0	67,6	6,3	30,4	0,4	2,0	21
Trancoso	101,5	79,0	25,8	20,1	1,1	0,9	129
Caraíva	135,4	84,7	23,2	14,5	1,3	0,8	160
Cumuruxatiba B	792,5	87,8	107,5	11,9	3,0	0,3	903*
Cumuruxatiba P	10731,1	74,3	3610,2	25,0	110,6	0,7	14452*
Prado	16,0	42,1	20,7	54,4	1,4	3,5	38
Alcobaça	220,4	67,3	103,4	31,6	3,7	1,1	328*
Caravelas	25,0	63,9	10,8	27,6	3,3	8,5	39

*Valores acima da faixa média global (10-200 nGy h⁻¹)

A taxa de dose efetiva anual foi determinada como recomenda a UNSCEAR, 2000 e os valores médios medidos no locais em estudo estão apresentados na Figura 20. Nos locais estudados, a dose efetiva anual variou entre 0,025 e 18,5 mSv a⁻¹, com uma média de 2,16 mSv a⁻¹. Os valores médios de Arraial D’Ajuda, Trancoso, Alcobaça, Caraíva e Cumuruxatiba são maiores do que a média mundial para a dose efetiva anual *outdoor* que é de 0,07 mSv a⁻¹ (UNSCEAR, 2000). Em Orissa, Índia, a dose efetiva é de 2,36 mSv a⁻¹ (MOHANTY *et al.*, 2004) cerca de 7,5 vezes menor do que a dose média de Cumuruxatiba. O cálculo da taxa de dose efetiva revela uma informação importante no que diz a respeito sobre ao potencial risco radiológico que essas areias expõe aos banhistas e principalmente aos moradores ribeirinhos da região.

Levando em consideração os valores de dose efetiva estabelecidos por HENDRY (2009), de que doses efetivas acima de 20 mSv a⁻¹ são altas, é válido ressaltar que apenas a dose efetiva externa *outdoor* provenientes das séries do ^{238}U e ^{232}Th , e do ^{40}K foi calculada neste estudo. Embora, a taxa de dose efetiva média em Cumuruxatiba seja de 17,72 mSv a⁻¹, isso equivale a cerca de 26% (UNSCEAR, 2000) da exposição a uma pessoa local. A essa dose deve ser ainda adicionada as doses internas e *indoor*, além da

adição da dose proveniente da radiação cósmica a nível do mar. O que nos leva a afirmar que Cumuruxatiba se enquadra como uma HBRA.

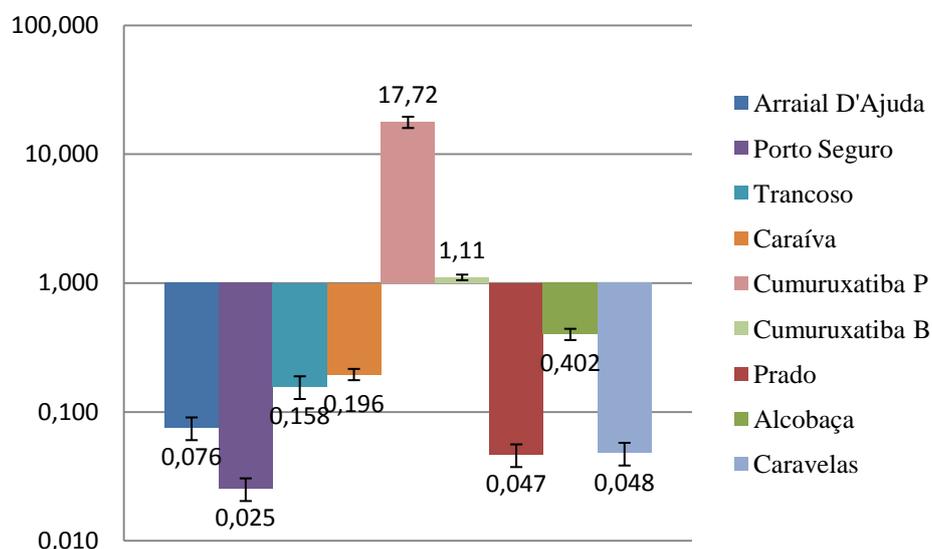


Figura 20 – Dose efetiva anual (mSv a⁻¹) nos locais em estudo; em escala logarítmica.

4.6 Sumário de comparações

A Tabela 21 apresenta um sumário de resultados dos níveis da radioatividade gama natural de outras partes do mundo e de outras partes da costa atlântica brasileira. Nessa tabela pode ser observado que a atividade específica do ²³²Th em Guarapari é maior do que o valor médio encontrado em Cumuruxatiba, contudo os valores das atividades específicas médias do ⁴⁰K e ²²⁶Ra encontrados em Cumuruxatiba são maiores do que nos demais lugares apresentados na tabela. O fato do ²²⁶Ra ter uma atividade específica maior em Cumuruxatiba nos leva a concluir que a atividade específica do ²³⁸U neste mesmo local seja superior às atividades específicas em Guarapari e Meaipe, desde que as amostras tenham permanecido durante um determinado período de tempo seladas e atingido equilíbrio radioativo, conforme foram realizadas com as amostras de Cumuruxatiba.

Os índices de riscos da radiação gama mostraram valores médios muito mais elevados em Cumuruxatiba P, B e Alcobaça do que nos demais locais tais como: Baoji e

Xianyang na China; Bushehr e Golfo Pérsico no Irã que apresentaram valores inferiores aos limites de 370 Bq kg^{-1} e 1 Bq kg^{-1} e Hurgada e Safaga no Egito.

Os valores das taxas de dose absorvida no ar e da dose efetiva encontrados nas areias pretas de Cumuruxatiba são os valores mais elevados da Tabela 21, seguidos de Orissa, Índia; Cumuruxatiba (areia clara) e Alcobaça. Os demais locais têm valores muito inferiores aos citados.

A Tabela 22 mostra as relações $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$, $^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$, $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ e $^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$ nas areias de praia nos locais em estudo e as relações obtidas em outros locais do mundo. Essas relações têm como objetivo analisar as atividades específicas dos principais radionuclídeos nos locais em estudo (BAHARI, 2007). A relação $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ em todos os locais em estudo foi superior a relação da média mundial que é cerca de 0,86. O que indica que as atividades específicas do ^{232}Th em todos os locais são maiores do que a de ^{238}U , o que não é normalmente encontrado. As relações $^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$ em Cumuruxatiba P e B mostram que a atividade específica do ^{238}U é maior do que a do ^{40}K , o que também não é normalmente encontrado. Já a relação $^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$ demonstra uma atividade específica para o ^{232}Th muito acima da média em relação a do ^{40}K em todos os locais em estudo exceto em Prado e Caravelas que possuem atividades do ^{40}K mais elevado do que o ^{232}Th .

Tabela 21 - Sumário das atividades específicas, índices de riscos da radiação gama e taxas de dose dos radioisótopos naturais em amostras de solos e areias de algumas regiões do mundo; (-) Não determinado; (*) Valor máximo

Região/País	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	Índices de Riscos da Radiação			Taxa de dose absorvida no ar	Dose efetiva anual	Referências
	(Bq kg ⁻¹)	(Bq kg ⁻¹)	(Bq kg ⁻¹)	R_{aeq} (Bq kg ⁻¹)	I_{yr} (Bq kg ⁻¹)	H_{Ex}	D (nGy h ⁻¹)	H_{E} (mSv a ⁻¹)	
Manisa/ Turquia	-	27,0	340	-	-	-	54,0	-	Ereeş et al., 2006
Golfo Pérsico/ Irã	35,0	26,0	395	<370	-	<1,0	37,0	-	Mohammad et al., 2008
Safaga/ Egito	25,3	21,4	618	<370	1,3*	-	50,9	-	El-Arabi., 2005
Hurgada/ Egito	20,6	22,4	548	<370	<1,0	-	26,5	-	El-Arabi., 2005
Bushehr/ Irã	35,0	17,0	285	<370	-	<1,0	30,0	-	Abdi et al., 2006
Praia Preta/ Brasil	-	239	110	-	-	-	125	0,150	Freitas et al., 2004
Dois Rios/ Brasil	-	48,0	412	-	-	-	63,0	0,080	Freitas et al., 2004
Xianyang/ China	31,1	44,9	776	155	1,17	0,42	73,9	0,091	Lu et al., 2008 ^a
Baoji/ China	22,1	39,0	859	144	-	0,39	69,6	0,085	Lu et al., 2006
Rizhao/ China	12,0	15,2	1079	-	-	-	59,8	0,073	Lu et al., 2008 ^b
Meaipe/ Brazil	1001	6.422	127	-	-	-	-	-	Veiga et al., 2006
Guarapari/ Brazil	4043	55.537	63,0	-	-	-	-	-	Veiga et al., 2006
Porto Seguro/ Brazil	313	1.735	25,0	-	-	-	-	-	Veiga et al., 2006
Orissa/ Índia	-	2.825	180	-	-	-	1.925	2,360	Mohanty et al., 2004
Cumuruxatiba (areia clara)/ Brasil	217	1.312	72,0	2.098	14,62	5,7	903	1,099	Dados do trabalho
Cumuruxatiba (areia preta)/ Brasil	7.814	17.767	2.652	33.292	230,81	90,0	14.401	17,724	Dados do trabalho
Alcobaça/ Brasil	81,9	365	41,4	606	4,22	1,64	260	0,402	Dados do trabalho

Tabela 22 – Relações entre os radionuclídeos nos locais em estudo e em outros locais no mundo

Local	$^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$	$^{232}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$	$^{238}\text{U}/^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th}/^{40}\text{K}$	$^{226}\text{Ra}/^{40}\text{K}$
Arraial D'Ajuda	2,75	0,60	4,61	0,58	1,61	2,69
Porto Seguro	1,92	1,68	1,14	1,23	2,35	1,40
Trancoso	5,79	3,01	1,93	1,11	6,41	2,13
Caraíva	5,46	5,15	1,06	1,36	7,44	1,45
Cumuruxatiba B	4,74	5,91	0,80	3,90	18,48	3,13
Cumuruxatiba P	5,92	2,27	2,61	1,13	6,70	2,95
Prado	2,25	0,60	3,73	0,37	0,83	1,38
Alcobaça	4,24	1,63	2,61	0,98	4,15	2,55
Caravelas	2,56	1,75	1,46	0,20	0,52	0,29
Outros locais						
Mundo (UNSCEAR, 2000)	0,86	0,86	1,00	0,09	0,08	0,09
Jabbar, 2008	-	0,69	-	-	0,08	0,12
Abdi, 2006	0,41	0,49	0,83	0,15	0,06	0,12
Lu, 2006	-	1,77	-	-	0,05	0,03
Lu, 2008 ^b	-	1,27	-	-	0,01	0,01

4.7 Considerações sobre o Equilíbrio Radioativo nas Amostras

Para a investigação da condição de equilíbrio radioativo secular é necessário comparar as atividades de diferentes membros pertencentes a uma mesma série de decaimento e verificar a igualdade destes resultados. Diferenças entre as atividades, calculadas por qualquer um dos membros de cada série, fornecem informações sobre o seu desequilíbrio.

Na família do ^{238}U , o período de trinta dias garante que ^{226}Ra , ^{222}Rn e seus filhos de meias-vidas curtas, em especial ^{214}Pb e ^{214}Bi , estejam em equilíbrio, ou seja, possuam a mesma atividade. Essa situação de equilíbrio permite que a atividade específica do ^{226}Ra , radionuclídeo de importância radiológica por ser pai do ^{222}Rn e ter meia-vida longa, seja avaliada por meio da energia gama do ^{214}Bi , filho de meia-vida curta em equilíbrio.

Em relação ao equilíbrio secular das cadeias de ^{232}Th e ^{238}U com seus respectivos filhos, pode-se observar, na Figura 21 (a), a correlação entre as atividades específicas entre os radioisótopos de ^{232}Th e ^{228}Ac e na Figura 21 (b) entre ^{238}U e ^{226}Ra . Nota-se, na referida figura, que não há equilíbrio entre os radionuclídeos de meias-vidas longas, situação esperada já que se trata de areia de praia sujeitas a intemperismo, marés, etc..

Na família do tório, o período de trinta dias assegura o equilíbrio entre ^{224}Ra , ^{222}Rn e todos os filhos, até o final da cadeia. A detecção destes filhos indica que o pai de meia-vida média, ^{228}Th , está presente. Durante este prazo, o equilíbrio entre ^{228}Ac e ^{228}Ra também é restabelecido.

Nas Figuras 22 (a) e (b) são mostradas as correlações entre as atividades de ^{214}Bi e ^{214}Pb para todas as amostras. Tendo em vista que o ^{226}Ra é o último nuclídeo de meia-vida longa acima do ^{214}Pb , pode-se afirmar que o equilíbrio entre ^{226}Ra e seus filhos foi estabelecido nas amostras. A correlação obtida, na Figura 22 (b), indica a aplicabilidade e confiabilidade do método de análise da espectrometria gama, pois foram obtidos valores próximos de atividade específica para ambos os radionuclídeos.

O estabelecimento do equilíbrio secular na família, entre ^{228}Ac e seus filhos pode ser verificado na Figura 22(a), em que é apresentada a correlação entre ^{228}Ac e ^{212}Pb . A correlação indica que as atividades específicas dos elementos foram próximas para todas as amostras, ou seja, o equilíbrio foi estabelecido. Mostrando que tanto o método de análise utilizado quanto os procedimentos de armazenagem das amostras para que entrassem em equilíbrio foram adequados.

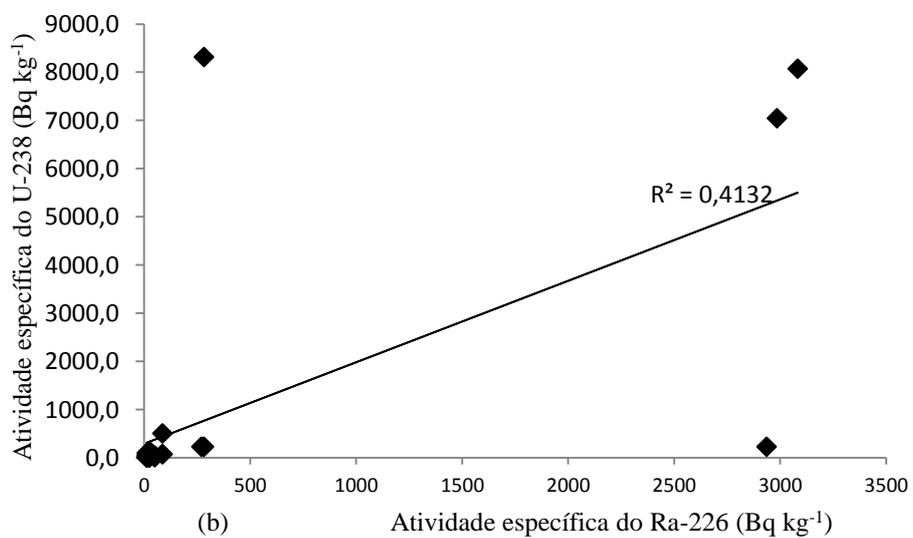
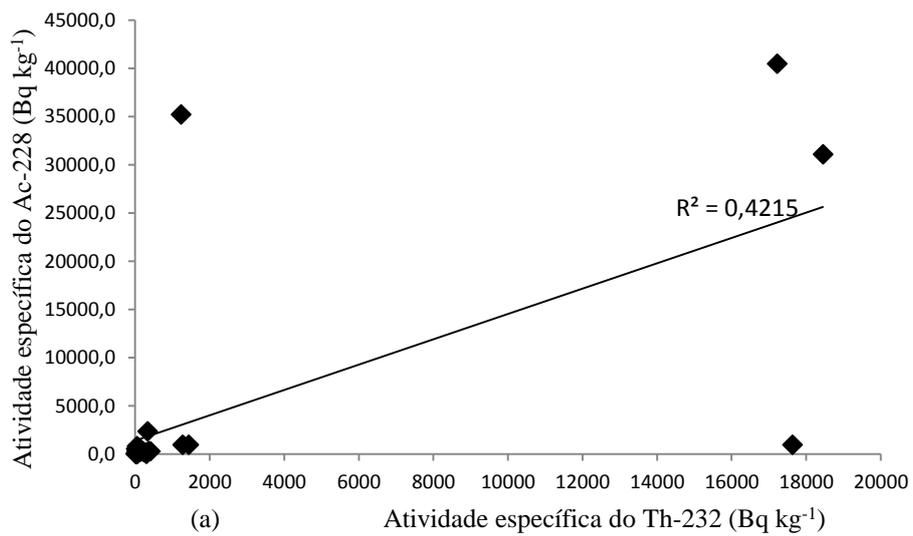


Figura 21 – Correlação entre as atividades específicas para (a) ^{232}Th e ^{228}Ac e (b) entre ^{238}U e ^{226}Ra .

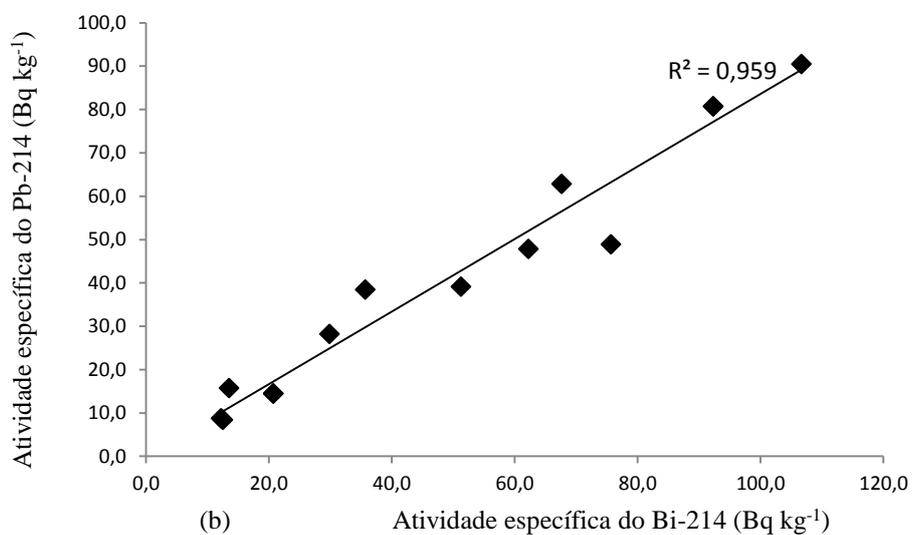
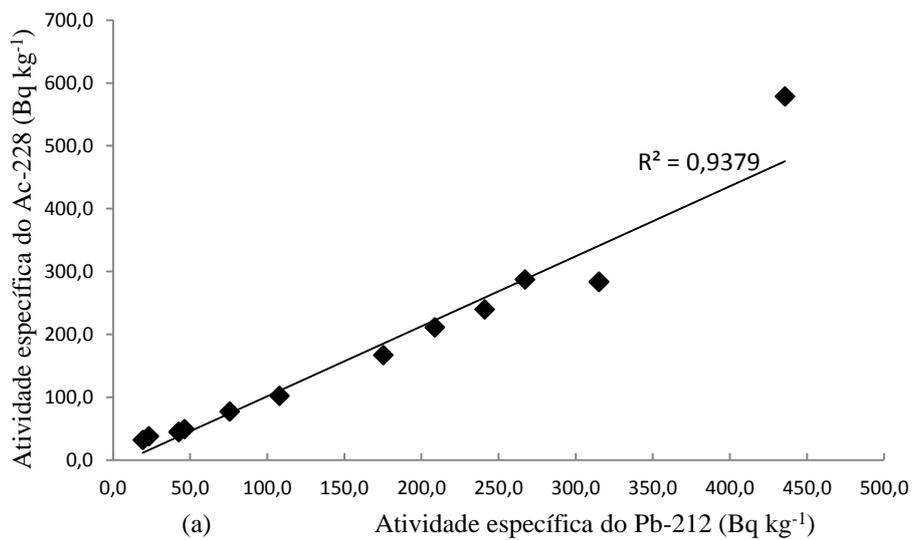


Figura 22 – Correlação entre as atividades específicas para (a) ^{228}Ac e ^{212}Pb e (b) entre ^{214}Pb e ^{214}Bi .

As correlações entre ^{226}Ra (filho do ^{238}U) e os radionuclídeos ^{232}Th nas amostras de areias dos diversos locais de coleta estão apresentados na Figura 23. O primeiro gráfico mostra uma fraca correlação ($R^2=0,6513$) entre esses radionuclídeos nos locais onde não há concentrações elevadas dos mesmos. O processo de lixiviação do ^{226}Ra , associado à sua maior mobilidade geoquímica, quando comparada com a do tório, pode ter sido um mecanismo auxiliar para essa baixa correlação. Em contra-partida o segundo gráfico mostra uma forte correlação ($R^2=0,9998$) onde há elevadas concentrações dos radionuclídeos ^{226}Ra e ^{232}Th . Nos estudos de KANNAN *et al.* (2002) e SHETTY *et al.* (2006) também foram encontradas fortes correlações entre esses radionuclídeos. O que sugere que há presença de minerais tais como: monazita e zirconita nas areias de Cumuruxatiba e Alcobaça.

Foram realizadas, também, duas correlações entre ^{232}Th e ^{238}U nas amostras de areias para altas e baixas concentrações dos radionuclídeos como mostra a Figura 24. Nos dois casos houve forte correlações, isso demonstra que os locais possuem minerais associados aos elementos Th e U. E fortalece, ainda mais, sugerir a presença de uma quantidade significativa de monazita e zirconita nas areias (MOHANTY, 2004).

A Figura 25 mostra uma fraca correlação entre os radionuclídeos ^{232}Th e ^{238}U com o ^{40}K . Isso indica que as concentrações do ^{40}K não estão associadas com a presença de mineral que contenha ^{232}Th nem ^{238}U . Esse mesmo comportamento foi observado no trabalho de MOHANTY *et al.* (2004).

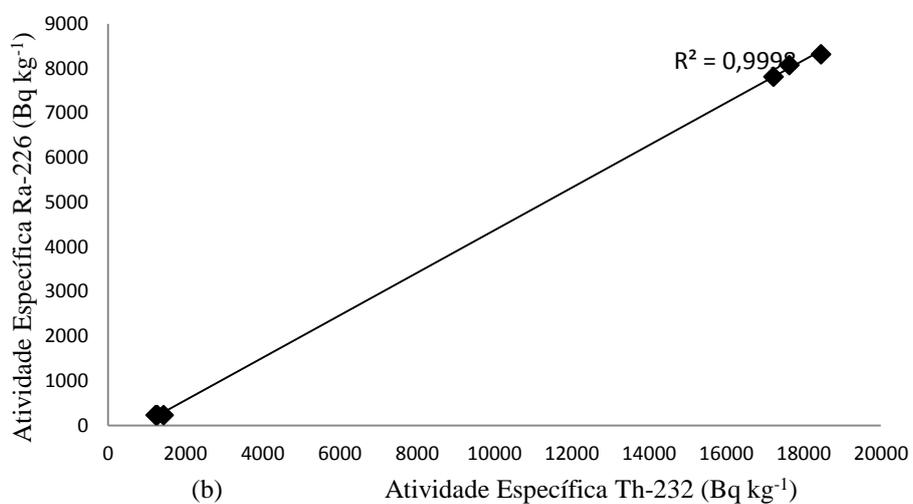
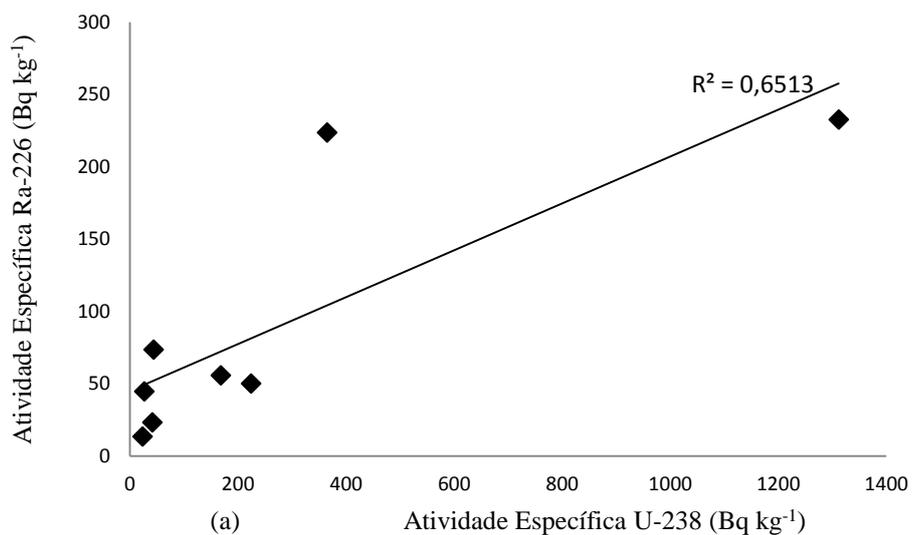


Figura 23 – Correlação entre ²³²Th e ²²⁶Ra nas areias de praia dos diferentes locais em estudo – (a) correlação das amostras de baixa atividade e (b) correlação das amostras de alta atividade

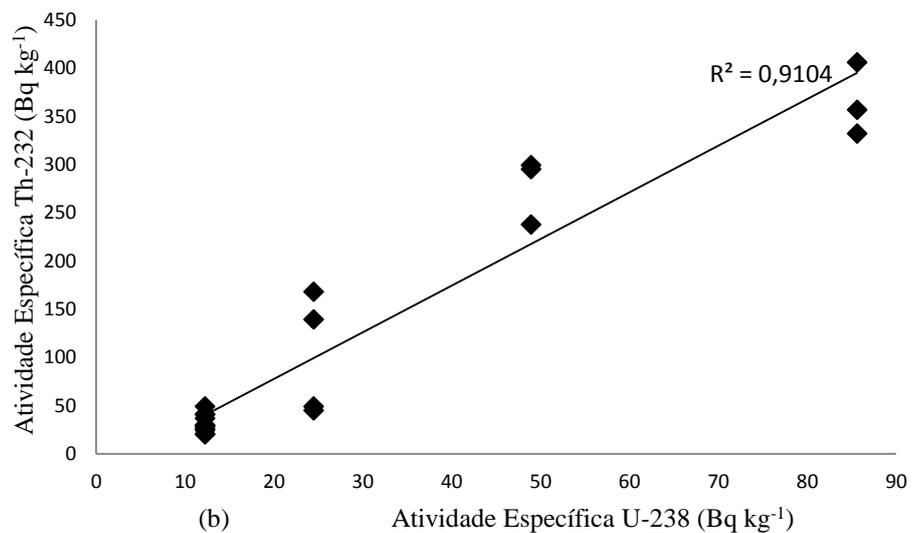
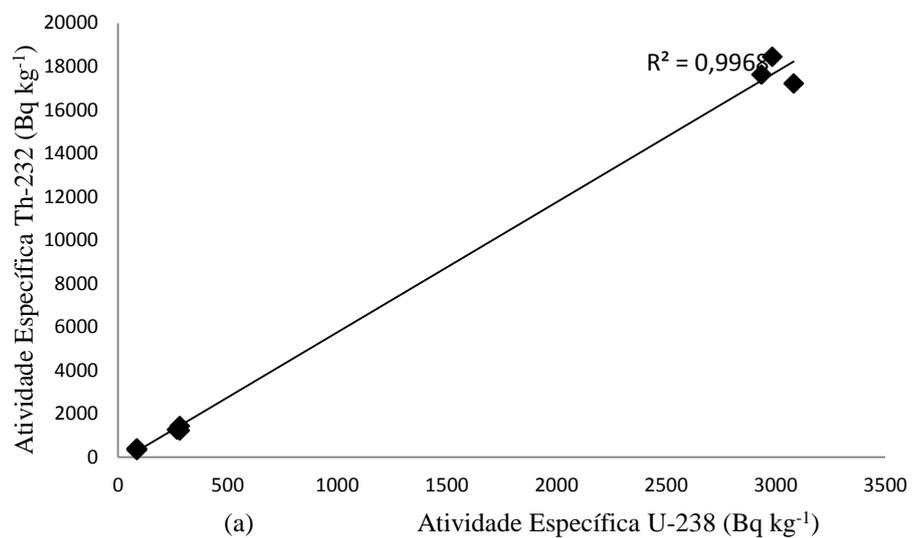


Figura 24 – Correlação entre as atividades específicas do ²³²Th e ²³⁸U nas amostras de areias – (a) correlação das amostras de alta atividade e (b) correlação das amostras de baixa atividade

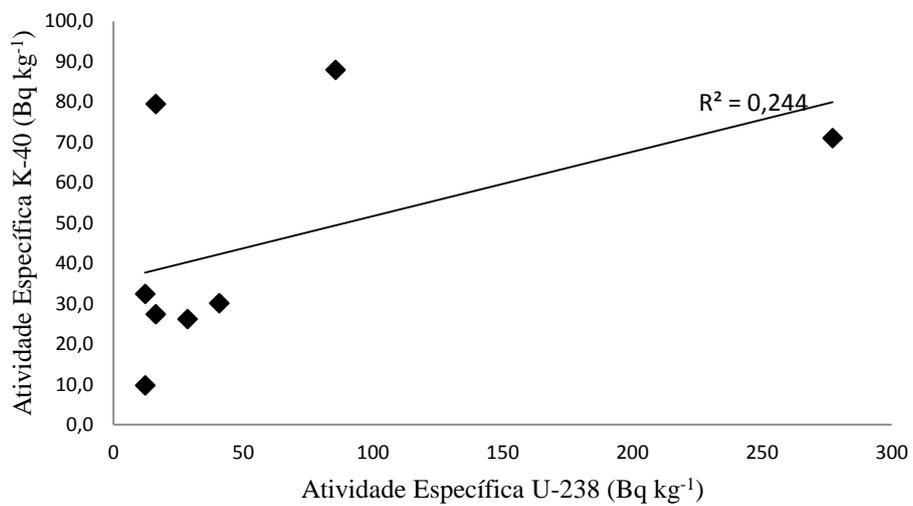
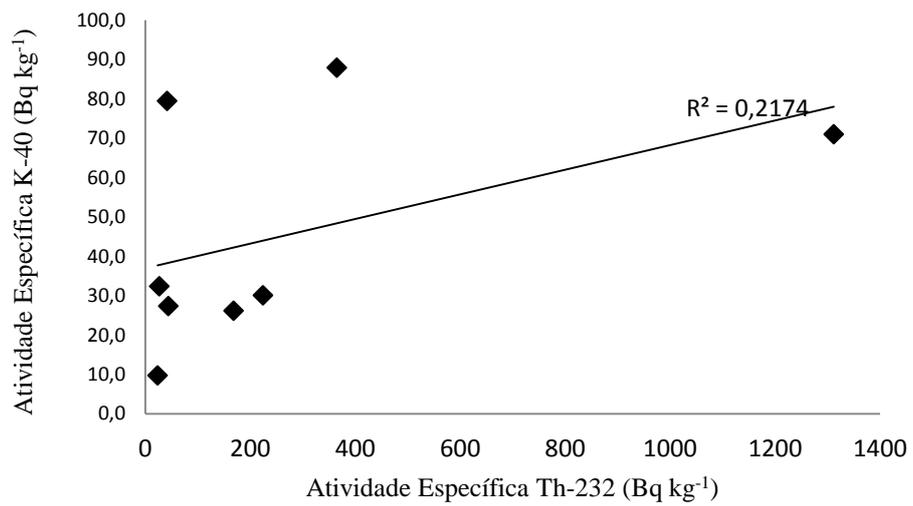


Figura 25 – Correlação entre ⁴⁰K e os radionuclídeos ²³²Th e ²³⁸U nas areias de praia dos diferentes locais em estudo

Capítulo 5 – Conclusões e Perspectivas Futuras

5.1 Conclusões

Para a realização deste trabalho foram medidas as concentrações dos radionuclídeos das séries do ^{238}U , ^{232}Th e do ^{40}K no litoral do extremo sul baiano, nas areias das praias de: Arraial D’Ajuda, Porto Seguro, Trancoso, Caraíva, Cumuruxatiba, Prado, Alcobaça e Caravelas, para assim estabelecer níveis de referências da radioatividade natural na Região. Para tanto, foram empregadas as técnicas de ativação neutrônica (através de método relativo para quantificar o ^{232}Th e o método de análise por nêutrons retardados de fissão, para a determinação de urânio total) e espectrometria gama (na determinação dos isótopos: ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{228}Ac e ^{40}K). Em seguida, foram calculadas: a taxa de dose absorvida no ar e a dose efetiva anual; no intuito de verificar se a região possui alto *background*; e os índices de risco da radiação gama, os quais determinam limites para o uso dessas areias como material de construção civil. Foram feitas também as correlações entre: os radionuclídeos de meias-vidas longas, entre os radionuclídeos de meias-vidas curtas e por fim entre os radionuclídeos de meias-vidas longas com os de meias-vidas curtas para o estudo do equilíbrio radioativo. Foram, também, traçadas duas curvas de calibração: uma experimental (utilizando padrões certificados pelo IRD) e a outra teórica utilizando o código MCNP-5, com a finalidade de validar o método e a geometria modelada empregados.

Primeiramente foi cumprido o objetivo de traçar a curva de calibração em eficiência para geometria em marinelli, para que, em seguida, fossem medidas as amostras. Os resultados analíticos confirmam que as areias de praia do Extremo Sul da Bahia contêm valores significantes dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra e ^{40}K . Os valores das atividades específicas desses radioisótopos foram maiores nas areias escuras de Cumuruxatiba (P) do que nos demais locais estudados, seguido de Cumuruxatiba B e Alcobaça. As taxas de doses absorvidas no ar a 1 m em Alcobaça e Cumuruxatiba (P e B) são maiores do que a média mundial. A taxa de dose efetiva anual *outdoor* em Alcobaça, Trancoso, Caraíva e Cumuruxatiba são, também, maiores do que a média mundial, o valor médio dessa taxa de dose em Cumuruxatiba a classifica como uma HBRA, além disso esse valor é superior a de outras regiões já classificadas como

regiões de alto *background*. Os índices de riscos da radiação gama em Alcobaça, Caraíva e Cumuruxatiba são maiores do que os limites estabelecidos pela UNSCEAR, o que significa que o uso dessas areias na construção civil não seja seguro segundo os critérios de radioproteção.

Estas informações são uma importante alerta para a população local evitar o uso dessas areias para construção de suas casas. A presença de magnetita, ilmenita e monazita pode ser a razão da coloração preta das areias de Cumuruxatiba que são minerais de interesse econômico, o que torna essa região alvo de possível exploração mineral necessitando de ser mais estudada. Além disso, os resultados deste trabalho podem ser usados para estabelecer níveis de referência da radioatividade natural ao longo da costa do extremo sul do estado da Bahia.

O programa MCNP, baseado no método Monte Carlo, mostrou-se uma importante ferramenta e de grande utilidade para simular a calibração em eficiência de um detector HPGe. Os resultados obtidos com a modelagem desenvolvida com: um detector, uma fonte padrão com emissores gamas de altas e baixas energias e uma geometria de um recipiente Marinelli Beacker mostraram um acordo com as medidas experimentais suficiente para validar o modelo. Embora que, essa concordância não tenha tido êxitos para baixas energias, foram estabelecidas novas curvas de ajustes para energias maiores do que 300 keV. Este trabalho é de importância para a obtenção de medidas mais precisas no Laboratório de Trítio do CDTN, onde são realizadas medidas da radioatividade natural em vários tipos de amostras, por espectrometria gama.

5.2 Perspectivas Futuras

Com intuito de dar continuidade a esse trabalho estão programadas novas coletas para o estudo do radônio e seus filhos na cidade de Alcobaça e na vila Cumuruxatiba, locais com maiores *backgrounds* da região estudada, com o objetivo de verificar a dose efetiva *indoor* externa, como também, a dose efetiva interna. Para tanto, serão utilizadas as técnicas de ativação neutrônica instrumental e a espectrometria de massa acoplada a uma fonte de plasma induzido.

Será também de fundamental importância o estudo da auto-absorção em amostras sólidas de densidades diferentes para uma correção mais precisa da técnica de espectrometria gama do Laboratório de Trítio - CDTN, utilizando o código MCNP-5.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ABDI, M.R., FAGHIHIAN, H., KAMALI, M., MOSTAJABODDAVATI, M.E HASANZADEH, A. Distribution of Natural Radionuclides on Coast of Busherhr, Persian Gulf, Iran. *Iranian Journal of Science & Technology*, Transaction A, 30, A3, 2006.

ADLOFF, J. P., Guillaumont R., *Fundamentals of Radiochemistry*. Boca Raton: CRC Press, 414 p, 1993.

AHMED, N.K., Measurement of natural radioactivity in building materials in Qena city, Upper Egypt. *Journal of Environmental Radioactivity*, 83, 91-99, 2005.

AKRAM, M., QURESHI, R.M., AHMAD, N., SOLAJJA, T.J., MASHIATULLAH, A., AFZAL, M., FARUQ, M.U., ZEB, L. Concentration of Natural and Artificial Radionuclides in Bottom Sediments of Karachi Harbour/Manora Channel, Pakistan Coast (Arabian Sea). *Journal of the Chemical Society of Pakistan*, 28, (3), 306-312, 2006.

ALENCAR, A.S. E FREITAS, A.C.. Reference levels of natural radioactivityfor the beach sands in a Brazilian southeastern coastal region. *Radiation Measurements*, 40, 76 – 83 2005.

ARAMBURU, X.O.; BISBAL, J.J., *Radiaciones ionizantes: utilización y riesgos*. Barcelona: Edicions UPC, 1994.

ATTIX, F.H. *Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry*, Jonh Wiley and Sons, USA, 1986.

BAHARI, I., MOHSEN, N.E ABDULLAH, P. Radioactivity and radiological risk associated with effluent sediment containing technologically enhanced naturally occurring radioactive materials in amang (tin tailings) processing industry. *Journal of Environmental Radioactivity*, 95, 161-170, 2007.

BECK, H.L. The physics of environmental gamma radiation fields. p. 101-133 *in*: The Natural Radiation Environment II (J.A.S. Adams, W.M. Lowder and T.F. Gesell, eds.). CONF-720805, 1972.

BENNET, B. G. Worldwide panorama of radioactive residues in the environment. In: *Restoration of environment with radioactive residues: papers and discussions*. IAEA: Arlington, 1999.

BERETKA, J. & MATHEW, P.J., Natural Radioactivity of Australian Building Materials, Industrial wastes and by-Products. *Health Psychology*, 48, 87-95, 1985.

BIRAL, A.R. O que vem a ser “radiações”. In: *Radiações ionizantes para médicos, físicos e leigos*. Florianópolis: Insular, cap.1, 2002.

BRIESMEISTER, J.F., MCNP – A general Monte Carlo code for neutron and photon transport, version 5, Los Alamos National Laboratory, Report LA-12625-M, 2003.

CHOUGAONKAR, M.P., EAPPEN, K.P., RAMACHANDRAN, T.V., SHETTY P.G., MAYYA, Y.S., SADASIVAN, S., VENKAT RAJ, V. Profiles of doses to the population living in the high background radiation areas in Kerala, India. *Journal of Environmental Radioactivity*, 71, 275-297, 2004.

CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear. *Diretrizes básicas de proteção radiológica: Norma CNEN-NN-3.01*. 2006

CNEN - Comissão Nacional de Energia Nuclear. *Posição Regulatória 3.01/001*, 2005.

COLLIER, D.E., BROWN, S.A., BLAGOJEVIC, N., SOLDENHOFF, K.H. RING, R.J. Thorium in mineral products. *Radiation Protection Dosimetry*, Nuclear Technology Publishing, 97, n. 2, 177–180, 2001.

CONTI, C.C. Medidas de Taxa de Kerma no Ar e Determinação de Coeficientes de Conversão Para Dose em Exposição Ambiental, DSc. Thesis, Universidade Federal do Rio de Janeiro. 1999.

CUCCIA, V. Estudo Da Distribuição De Radionuclídeos Naturais Na Bauxita, Processo Bayer E Seus Produtos E Resíduos. Dissertação de Mestrado, Universidade Federal de Minas Gerais. 73p 2006.

CUTSHALL, N.H., LARSEN, I.L. E OLSEN, C.R. Direct analysis of ^{210}Pb in sediment samples: self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods*, 206, 309-312, 1983.

DEBERTIN, K., HELMER, R.G. Gamma and X-Ray Spectrometry with Semiconductor Detectors. North-Holland, Amsterdam, 1988.

DE CORTE, F. The traceability of neutron activation analysis (NAA) k0 standardization method. *Journal. Trace and Microprobe Techniques*, 5, 2-3, 161-170, 1987.

DICKSON, B.L., SCOTT, K.M. "Interpretation of Aerial Gamma-Ray Surveys - Adding the Geochemical Factors", *AGSO Journal of Australian Geology and Geophysics*, 17, (2), 187-200, 1997.

DURRANCE, E.M. Radioactivity in Geology: principles e applications, 1 ed Chichester, Ellis Horwood Limited, 1986.

ECKERMAN, K.F. & RYMAN, J.C. External exposure to radionuclides in air, water, and soil. Federal Guidance Report No. 12. EPA 402-R-93-081, 1993.

EHMANN, W. & VANCE, D. E. Radiochemistry and nuclear methods of analysis. New York: John Wiley, 513 p., 1991.

EL-ARABI, A. M., Natural radioactivity in sand used in thermal therapy at the Red Sea Coast. *Journal of Environmental Radioactivity*, 81, 11-19, 2005.

EREEŞ, F.S., AKÖZCAN, S., PARLAK, Y., ÇAM, S. Assessment of Dose Rates Around Manisa (Turkey). *Radiation Measurement*. 41, 598-601, 2006.

EWA, I.O.B., BODIZS, D., CZIFRUS, SZ. E MOLNAR, ZS. Monte Carlo Determination of Full Energy Peak Efficiency for a HPGe Detector. *Applied Radiation and Isotopes*. 55, 103-108, 2001.

FRAME, P. *Boron Trifluoride (BF₃) Neutron Detectors*. Oak Ridge Associated Universities. 2004. Disponível em : <<http://www.ornl.gov/PTP/collection/proportional%20counters/bf3info.htm>>. Acesso em: 27 fev 2007.

FREITAS, A.C., ALENCAR, A.S. Gamma dose rates and distribution of natural radionuclides in sand beaches—Ilha Grande, Southeastern Brazil. *Journal of Environmental Radioactivity*, 75 (2), 211–223, 2004.

FUJINAMI, N. KOGA, T. MORISHIMA, H. External Exposure Rates from Terrestrial Radiation at Guarapari and Meaipe in Brazil, 1999.

GONZÁLEZ-CHORNET G.E GONZÁLEZ-LABAJO J. Natural Radioactivity in Beach Sands From Doñana National Park and Mazagón (Spain). *Radiation Protection Dosimetry*. 112, (2), 307-310, 2004.

HARLEY, N.H. & I.M. FISENNE. Distribution and α -radiation dose from naturally occurring U, Th and Ra in the human skeleton. *Health Physics*. 58, 515-518, 1990.

HASSAN, A.M., ABDEL-WAHAB., NADA, A., WALLEY EL-DINE, N. E KHAZBAK, A. Determination of Uranium and Thorium in Egyptian Monazite by Gamma-Ray Spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*. 48, 149-152, 1997.

HENDRY, J.H., SIMON, S.L., WOJCIK, A., SOHRABI, M., BURKART, W., CARDIS, E., LAURIER, D., TIRMARCHE, M.E HAYATA I. Human exposure to high natural background radiation: what can it teach us about radiation risks? *Journal of Radiation Protection*. 29, A29-A42, 2009.

HEWAMANNA, R., SUMITHRARACHCHI, C.S., MAHAWATTE, P., NANAYAKKARA, H.L.C., RATNAYAKE, H.C., Natural radioactivity and gamma

dose from Sri Lankan clay bricks used in building construction. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation*. 54, 365–369, 2001.

HIGGY, R.H., EL-TAHAWY M.S., ABDEL-FATTAH A.T., AL-AKABAWY U.A. Radionuclide content of building materials and associated gamma dose rates in Egyptian dwellings. *Journal of Environmental Radioactivity*. 50, 253-261, 2000.

HORE-LACY, I. Nuclear electricity. Uranium Information Centre Ltd., 2003

HUIST, W., Thorium. Gmelin handbook of inorganic and organometallic chemistry, supplement v. B1, eighth ed. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1997.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA), *Airborne Gamma Ray Spectrometer Surveying*, Technical Reports Series n. 323, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1991.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA), *Gamma-Ray Surveys in Uranium Exploration*, IAEA – TECHNICAL REPORTS SERIES 186, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 1979.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA), *Guidelines for Radioelement Mapping Using Gamma Ray Spectrometry Data*, IAEA-TECDOC 1363, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 2003.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). *X ray and gamma-ray standards for detector calibration*. IAEA publication, technical report: *TECDOC 619*, INSS 1011-4289, Vienna, Austria, 1991.

INSTITUTO BRASILEIRO DE GEOGRAFIA E ESTATÍSTICA (IBGE). Acessado em janeiro de 2010. <http://www.ibge.gov.br/home/>

INTERNATIONAL BASIC SAFETY STANDARDS, (IBSS) *for Protection Against Ionizing Radiation*. Safety Series 115, International Atomic Energy Agency, 1996.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2. Ingestion dose coefficients* (ICRP). Pergamon Press 67, Oxford, 1994.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS (ICRU), *Fundamental Quantities and Units for Ionizing Radiation*, Report 60, Bethesda, Maryland, USA, 1998.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS (ICRU), *Gamma-Ray Spectrometry In the Environment, Report 53*, Bethesda, Maryland, USA, 1994.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection –* (ICRP) Publication 60, 1990.

IEEE, STANDARD TEST PROCEDURES FOR GERMANIUM GAMMA-RAY DETECTORS, Standard Test Procedures for Germanium Gamma-Rays Detectors, 325, 1986.

JABBAR, T., KHAN, K., SUBHANI, M.S., AKHTER, P. E JABBAR, A. Environmental Gamma Radiation Measurement in District Swat, Pakistan. *Radiation Protection Dosimetry* 132 (1), 88-93, 2008.

JUNGE, C.E. Air Chemistry and Radioactivity. New York: *Academic Press*, 1963

JÚNIOR, J. A. S. AMARAL, R. S. SILVA, C. M. MENEZES, R. S. C. BEZERRA, J. D. Estudo comparativo entre os detectores HPGe e NaI(Tl) na determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo. *Scientia Plena*. 5, 1-16, 2009.

KANNAN, V., RAJAN, M.P., IYENGAR, M.A.R., RAMESH, R., Distribution of natural and anthropogenic radionuclides in soil and beach sand samples of Kalpakkam (India) using hyper pure germanium (HPGe) gamma ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes* 57, 109-119. 2002.

- KAPLAN, Irving. *Física Nuclear*. 2 ed. Rio de Janeiro: Guanabara Dois, 1978.
- KETCHAM, R.A., An improved method for determination of heat production with gamma-ray scintillation spectrometry. *Chemical Geology*, 130, 175-194, 1996.
- KNOLL, G.F., Radiation detection and measurements. 2° Ed. New York, John Wiley & Sons, 754p 2000.
- LAMARSH, J.R., & BARATTA, A.J., *Introduction to Nuclear Engineering*. Prentice Hall, 2001.
- LOPEZ, M.A. CURRIVAN, L. FALK, R. OLKO, P. WERNLI, C. CASTELLANI, C.M. Workplace monitoring for exposures to radon and to other natural sources in Europe: integration of monitoring for internal and external exposures. *Radiation Protection Dosimetry*, 112, (1), 121–139, 2004.
- LUDINGTON, M.A., HELEMER, R.G. High Accuracy measurements and Monte Carlo Calculations of the Relative Efficiency Curve of an HPGe Detector from 433 to 2754 keV. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research. A*. 446 (3), 506-521, 2000.
- LU, X. & ZHANG, X.,. Measurement of Natural Radioactivity in Beach Sands From Rizhao Bathing Beach, China. *Radiation. Protection. Dosimetry*. 130, 385-388, 2008.
- LU, X. & ZHANG, X. Measurement of Natural Radioactivity in Sand Samples Collected From the Baoji Weihe Sands Park, China. *Environmental Geology*. 50, 977-982, 2006.
- LU, X., ZHANG, X., WANG, F.,. Natural Radioactivity in Sediment of Wei River, China. *Environmental Geology*. 53, 1475-1481, 2008.
- MALANCA, A., GAIDOLFI, L., PESSINA, V., DALLARA, G. Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in soils of Rio Grande do Norte (Brazil). *Journal of Environmental Radioactivity*. 30, 55–67, 1996.

MALANCA, A., PESSINA, V., DALLARA, G., LUCE, C. N. E GAIDOLFI, L. Natural Radioactivity in Building Materials from the Brazilian State of Espírito Santo. *Applied Radiation and Isotopes*. 12, 1387-1392, 1995.

MALATHI, J., SELVASEKARAPANDIAN, S., BRAHMANANDHAN, G.M., KHANNA, D., MEENAKSHISUNDARAM, V., JOSE, M.T., RAJAN, M.P. HEGDE, A.G. Gamma Dose Measurement in Dwellings of Agastheeswaram Taluk of Kanyakumari District, Lying 30 km Radius from Kudankulam Nuclear Power Plant Site. *Environmental Monitoring and Assessment*.137, 163-168, 2008.

MENEZES, M.A.B.C., SABINO, C.V.S., Thorium: determination by CDTN, Brazil. *Czechoslovak Journal of Physics*, 49, (1), 359-365, 1999.

MEZRAHI, A. Avaliação Crítica dos Requisitos de Segurança e Radioproteção Adotados para o Transporte de Minérios e Concentrados que Contêm Urânio e Tório. *Tese de doutorado, Universidade Federal do Rio de Janeiro*, 140p., 2005.

MOHANTY, A.K., SENGUPTA, D., DAS, S.K., VIJAYAN, V., SAHA, S.K., Natural radioactivity in the newly discovered high *background* radiation area on the eastern coast of Orissa, India. *Radiation Measurement*. 38, 153–165. 2004.

MØLLER, A. P. & MOUSSEAU, T. A. Biological consequences of Chernobyl: 20 years on. *TRENDS in Ecology and Evolution*. 21, (4). April, 2006

MORTON, L.S. EVANS, C.V. Uranium And Thorium Distributions In Soils And Blueberry. *Journal Environmental Quality*. 31, 155–162, 2002.

MOSTAJABODDAVATI, M. HASSANZADEH, S. FAGHIHIA, N.H. Efficiency calibration and measurement of self-absorption correction for environmental gamma-spectroscopy of soil samples using Marinelli beaker. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*. 268, (3), 539-544, 2006.

MSPC, 2006. Mspc - Artigos e Informações Técnicas. Tabela Periódica dos Elementos Químicos. Disponível em: <<http://www.mspc.eng.br/quim1/quim1.shtml>>. Acesso em: 02 de agosto 2010.

NAVAS, A., SOTO, J., MACHÍN, J., ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{232}Th , and ^{40}K activities in soil profiles of the Flysch sector (Central Spanish Pyrenees). *Applied Radiation and Isotopes.*, 57, 579–589, 2002.

OLIVEIRA, D.S., Um estudo sobre o desequilíbrio radioativo da série do urânio em amostras de solo. *Tese de doutorado, Universidade de São Paulo*, 140p., 2006.

PASCHOA, A.S.,. More than forty years of studies of natural radioactivity in Brazil. *Technology*, 7, 193–212, 2000.

PENNA-FRANCA, E., ALMEIDA, J.C., BECKER, J., EMMERICH, M., ROSER, F.X., KEGEL, G., HAINSBERGER, L., CULLEN, T.L., PETROW, H., DREW, R.T., EISENBUD, M.,. Status of investigations in the Brazilian areas of high natural radioactivity. *Health Physics.*, 11, 699–712, 1965.

PETOUSSI, N., ZANKL, M. SAITO K. Organ doses to adults and children from environmental gamma rays. p. 372-377 in: *The Radioecology of Natural and Artificial Radionuclides* (W. Feldt, ed.). Verlag TÜV Rheinland GmbH, Köln, 1989.

RAMLI, A.T., APRIANTORO, N.H., WAGIRAN, H. Assessment of Radiation Dose Rates in the High Terrestrial Gamma Radiation Area of Selama District, Perak, Malaysia. *Applied Physics Research*. 1(2), 45-52, 2009.

RAMLI, A.T. Environmental terrestrial gamma radiation dose and its relationship with soil type and underlying geological formations in Pontian District, Malaysia. *Applied Radiation and Isotopes*. 48, 407–412, 1997.

RÓDENAS, J.; GALLARDO, S.; BALLESTER, S.; PRIMAULT, V.; ORTIZ, J. Application of the Monte Carlo method to the analysis of measurement geometries for

the calibration of a HP Ge detector in an environmental radioactivity laboratory. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*. 263, 144–148, 2007.

SACHETT, I.A., Caracterização da radiação gama ambiental em áreas urbanas utilizando uma unidade móvel de rastreamento. Ph.D. Thesis, Rio de Janeiro State University. 2002.

SAGHATCHI, F., SALOUTI, M. ESLAMI, A. Assessment of Annual Effective Dose Due to Natural Gamma Radiation in Zanjan (IRAN). *Radiation Protection Dosimetry*.132 (3), 346-349, 2008.

SAITO, K. & JACOB, P. Gamma ray fields in the air due to sources in the ground. *Radiat. Prot. Dosim.*, 58, 29-45, 1995.

SAITO, K., PETOUSSI-HENSS, N. ZANKL., M. Calculation of the effective dose and its variation from environmental gamma ray sources. *Health Physics*. 74, 698-706, 1998.

SAITO, K., PETOUSSI, N. ZANKL M. Calculation of organ doses from environmental gamma rays using human phantoms and Monte Carlo methods. Part I. Monoenergetic sources and natural radionuclides in the ground. *GSF-Bericht 2/90*, 1990.

SANTOS, R. N. Implatação da Metodologia de Espectrometria Alfa Para a Determinação de Isótopos de U e Th em Rochas Ígneas: Aplicação ao Estudo de Desequilíbrio Radioativo na Ilha da Trindade. *Tese de doutorado, Universidade de São Paulo* 120p., 2001.

SEI, 2007. Informações Geoambientais da Superintendência de Estudos Econômicos e Sociais da Bahia. Disponível em: <http://www.sei.ba.gov.br/geoambientais/cartogramas/index_cartogramas.php>. Acesso em: 29 jul. 2010.

SELVASEKARAPANDIAN, S., SIVAKUMAR, R., MANIKANDAN, N.M., MEENAKSHISUNDARAM, V., RAGHUNATH, V.M., GAJENDRAN, V., Natural

radionuclide distribution in soils of Gudalore, India. *Applied Radiation and Isotopes*. 52, 299–306, 2000.

SHETTY, P.K. NARAYANA, Y. SIDDAPPA, K. Vertical profiles and enrichment pattern of natural radionuclides in monazite areas of coastal Kerala. *Journal of Environmental Radioactivity*. 86, 132-142, 2006.

SHTANGEEVA, I. AYRAULT, S. JAIN, J. Thorium uptake by wheat different stages of plant growth. *Journal of Environmental Radioactivity*. 81, 283-289, 2005.

SILVA, E. A. Determinação da Taxa de Desintegração e das Probabilidades de Emissão Gama por Decaimento do ^{182}Ta . Dissertação (Mestrado em Ciências na Area de Tecnologia Nuclear- Aplicações. São Paulo, 2008.

SILVA, J.A.R. SOUZA, W. SABINO C.V.S. E MENEZES, M.A.B.C. “Delayed Fission Neutron Method Applied at CDTN/CNEN” 2007 *International Nuclear Atlantic Conference*, Santos, SP, Brazil, September 30 to October 5, 2007.

TAUHATA, L., P. A. SALATI, I., PRINZIO, R. d., & PRINZIO, A. R.; *Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos*; CNEN (5 ed.), Rio de Janeiro, Brasil, 2003.

TUPYNAMBÁ, G.A.C. *Análise de rotina de urânio e tório pelo método de nêutron retardados*. Dissertação (Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares) – Escola de Engenharia, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo Horizonte. 1969.

UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effect of Atomic Radiation. Source and effects of ionizing radiation, 2000 (Ver também 1993 e 1988).

VASCONCELLOS, R. M., METELO, M. J., MOTA, A. C. M., GOMES, R. D., 1994, *Geofísica em Levantamentos Geológicos no Brasil*, CPRM, Serviço Geológico do Brasil, Rio de Janeiro, 165 p.

VEIGA, R. SANCHES, N. ANJOS, R.M. MACARIO, K. BASTOS, J. IGUATEMY, M. AGUIAR, J.G. SANTOS, A.M.A. MOSQUERA, B. CARVALHO, C. BAPTISTA FILHO, M. UMISED, N.K. Measurement of natural radioactivity in Brazilian beach sands. *Radiation Measurements*, 41- 189-196, 2006.

ZAIDI, J.H. Arif, M. Ahmad, S. Fatima, I. Qureshi, I.H. Determination of natural radioactivity in building materials used in the Rawalpindi/Islamabad area by γ -ray spectrometry and instrumental neutron activation analysis. *Applied Radiation and Isotopes*. 51, 559-564, 1999.

ZAMBONI, C. B.; Fundamentos da Física de Nêutrons. Editora - Livraria da Física. 1^a edição, 2007.

WARNECK, P. Chemistry of the natural atmosphere. San Diego. California.: *Academic Press*, 2000.

ANEXO 1

INPUT

c

1	4	-5.323	-1	13 -14	trcl (0 0 1.005)	imp:p=1 \$ detector
2	0		-2	9 -15	#1	imp:p=1 \$ vacuo detector
3	5	-2.7	-3	8 -16	#1#2	imp:p=1 \$ detector/ aluminio externo
4	3	-0.00125	-4	10 -16	#1#2#3	imp:p=1 \$ cilindro ar/detecto
5	1	-0.92	-5	11 -17	#1#2#3#4	imp:p=1 \$ plastico
6	2	-1.0	-6	12 -18	#1#2#3#4#5	imp:p=1 \$ agua/fonte
7	1	-0.92	-7	10 -19	#1#2#3#4#5#6	imp:p=1 \$ plastico maior
8	3	-0.00125	-20		#1#2#3#4#5#6#7	imp:p=1 \$ esfera d ar
9	0		20			imp:p=0 \$ vacuo

c surfaces

1	cz	3.05
2	cz	3.35
3	cz	3.50
4	cz	4
5	cz	4.2
6	cz	5.3
7	cz	5.5
8	pz	0
9	pz	0.15
10	pz	1.46
11	pz	1.586
12	pz	1.643
13	pz	3.881
14	pz	6.431
15	pz	7.936
16	pz	8.086
17	pz	8.286
18	pz	11.586
19	pz	11.786
20	so	50

```

sdef erg=d1 pos=0 0 0 AXS=0 0 1 RAD=d2 EXT=d3 par=2 CEL=6
si1 1 0.081 0.2764 0.3029 0.356 0.3839 0.6047 0.7958 1.1732 1.3325
sp1 d 0.3280 0.0729 0.1860 0.6230 0.0884 0.9760 0.8540 1.0 1.0
si2 0 10
sp2 0 1
c
si3 -10 20
sp3 0 1
c
mode p
c
m1 6000 -0.86 & $ plastico
    1000 -0.14
m2 8000 -0.335 & $ água
    1000 -0.665
m3 6000 -0.000125 & $ ar
    7000 -0.755267 &
    8000 -0.231781 &
    18000 -0.012827
m4 32000 -1 $ ge
m5 13000 -1 $ Al
F8:p 1
FT8: GEB 0.000209 0.002578 0.0
c
E8 0 0.00001 0.001 4000I 1.5
nps 100000000

```

ANEXO 2

TRABALHOS GERADOS NESTA TESE