



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO  
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS  
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR  
COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR  
CENTRO REGIONAL DE CIÊNCIAS NUCLEARES DO NORDESTE  
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM TECNOLOGIAS ENERGÉTICAS E  
NUCLEARES

FILIPE LOPES DE BARROS CORREIA

**DETERMINAÇÃO E PADRONIZAÇÃO DE MODELO SEMIEMPÍRICO PARA  
INVESTIGAÇÃO RADIOQUÍMICA DO  $^{134}\text{CS}$  E  $^{137}\text{CS}$  EM AMOSTRAS DE  
AÇÚCAR**

Recife

2019

FILIFE LOPES DE BARROS CORREIA

**DETERMINAÇÃO E PADRONIZAÇÃO DE MODELO SEMIEMPÍRICO PARA  
INVESTIGAÇÃO RADIOQUÍMICA DO  $^{134}\text{CS}$  E  $^{137}\text{CS}$  EM AMOSTRAS DE  
AÇÚCAR**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Ciências.

**Área de concentração:** Dosimetria e Instrumentação Nuclear.

**Orientador:** Prof. Dr. José Araújo dos Santos Junior.

**Coorientador:** Prof. Dr. José Wilson Vieira.

Recife

2019



**DETERMINAÇÃO E PADRONIZAÇÃO DE MODELO SEMIEMPÍRICO PARA  
INVESTIGAÇÃO RADIOQUÍMICA DO  $^{134}\text{CS}$  E  $^{137}\text{CS}$  EM AMOSTRAS DE  
AÇÚCAR**

Dissertação apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito parcial para a obtenção do título de Mestre em Ciências.

Aprovada em: 15/02/2019.

**BANCA EXAMINADORA**

---

Prof. Dr. José Araújo dos Santos Junior (Orientador)  
Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral (Examinador Interno)  
Universidade Federal de Pernambuco

---

Prof<sup>a</sup>. Dr<sup>a</sup>. Mariana Brayner Cavalcanti Freire Bezerra (Examinadora Interna)  
UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO

---

Prof. Dr. Alberto Antônio da Silva (Examinador Externo)  
INSTITUTO FEDERAL DE PERNAMBUCO

A minha esposa, pelo amor e apoio;  
Aos meus pais e irmãos,

Dedico.

## AGRADECIMENTOS

À Keyth Roslyn Barbosa da Silva, minha esposa, por todo amor, apoio, paciência e suporte.

Aos meus pais, Maria do Socorro Bezerra Lopes e Solidônio de Barros Correia, pelo carinho, apoio e conselhos que me ajudaram a trilhar o melhor caminho.

Aos meus irmãos, Dante Lopes de Barros Correia e Pedro Lopes de Barros Correia, pelo amor e incentivo.

Aos familiares e amigos pela compreensão em função da minha ausência no decorrer deste mestrado.

Ao orientador Dr. José Araújo dos Santos Júnior pela paciência, ensinamentos e oportunidade de ingressar no Grupo de Radioecologia da Universidade Federal de Pernambuco.

Ao coorientador Dr. José Wilson Vieira pelo direcionamento e motivação.

Aos colegas de grupo, Alberto, Andrey, Ariosto, Arykerne, Bruno, Eduardo, Josineide, Kennedy, Marcela, Lino, Marvic, Nilson, Otávio, Ricardo, Rodrigo, Suzana, Vinicius, Zahily pelo companheirismo e colaboração.

Ao Departamento de Energia Nuclear e aos funcionários que possibilitaram as análises e desenvolvimento deste trabalho.

À banca examinadora do seminário I composta pelos membros: Dr. Viriato Leal Neto, Dr. Jairo Dias Bezerra e Dra. Jair de Lima Bezerra que contribuíram muito com as correções e sugestões.

À banca examinadora do seminário II composta pelos membros: Dr. Romilton dos Santos Amaral, Dr. Viriato Leal Neto e Dr. Alberto Antônio da Silva que contribuíram muito com as discussões, correções e sugestões.

A CAPES pelo apoio financeiro.

## RESUMO

A presença de radioisótopos antrópicos no ambiente é decorrente de testes e acidentes nucleares, o que requer e justifica constante monitoramento para garantia da segurança e controle das atividades que envolvem essas aplicações. No Brasil, ao exportar alguns produtos alimentícios, a depender do país de destino, é exigido laudo radiométrico, em especial para o açúcar que apresenta alto consumo mundial. A investigação dos níveis de  $^{134}\text{Cs}$  e de  $^{137}\text{Cs}$  em matrizes de açúcar é exigida de forma a prever situações de anormalidades radioativas com base na caracterização e quantificação em termos de atividades específicas. A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), órgão que fiscaliza as aplicações nucleares no Brasil, em sua resolução nº 102 de 22 de dezembro de 2010 aprovou posições regulatórias, incluindo os níveis de ação para controle de alimentos, recomendados para restrição à comercialização de produtos alimentares em geral, cuja atividade específica seja superior ao limite de 1,0 kBq/kg para os referidos isótopos do céσιο de forma independente. Visando melhorias nas análises que já são realizadas no Laboratório de Radioquímica e Análise Nuclear (LABRAN) do Departamento de Energia Nuclear (DEN) da Universidade Federal de Pernambuco (UFPE) para a garantia da qualidade radiométrica do açúcar comercializado no Brasil, foi determinado um procedimento padrão para investigação desses radioisótopos. Para realização dos ensaios foi utilizada análise não destrutiva por espectrometria gama de alta resolução, onde foram priorizados parâmetros que influenciam diretamente nas análises qualitativas e quantitativas desses isótopos, como a calibração em energia e em eficiência, resolução, influência da alta absorção, estatística de contagem associada diretamente com o tempo de análise, influência da radiação de fundo e geometria de análise. O uso deste procedimento possibilita confiança na quantificação do  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  nos tipos de açúcar mais comercializados e exportados pelo Brasil.

Palavras chave: Alimento. Açúcar. Monitoração. Nuclear. Radiometria. Radionuclídeos.

## ABSTRACT

The spread of anthropogenic radioisotopes in the environment comes from nuclear tests and accidents that occurred in the past, which justifies constant monitoring, to guarantee the safety and control of the activities that involve these applications. Brazil, when exporting some food products, depending on the country of origin, a radiometric report is required, especially for sugar that has high world consumption and the possibility of contamination of the population, when radioisotope is present. Therefore, the investigation of the levels of Cs-134 and Cs-137 in sugar matrices is necessary to predict radioecological emergency situations. The National Nuclear Energy Commission, the agency that oversees nuclear applications in Brazil, With Resolution No. 102 of December 22, 2010 approved regulatory positions, including levels of action for food control, recommended to restrict the marketing of food products in Brazil. General, whose specific activity is higher than the limit of 1.0 kBq / kg for the said isotopes of cesium independently. Aiming for improvements in the analyzes that are already performed in the Laboratory of Radioecology and Environmental Control of the Department of Nuclear Energy of the Federal University of Pernambuco to assurance the quality of sugar marketed in Brazil, a standard procedure for the analysis of these radionuclides in this matrix was determined. High resolution gamma spectrometry with non-destructive analysis was used to perform the tests. Priority was given to parameters that directly influence the qualitative and quantitative analysis of these radioactive elements, such as calibration in energy and efficiency, resolution, influence of self-absorption, counting statistics directly associated with the time of analysis, influence of background radiation and geometry analysis. The use of this procedure allows confidence in the quantification of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in the types of sugar most commercialized and exported by Brazil.

Keywords: Food. Sugar. Monitoring. Nuclear. Radiometry. Radionuclides.

## LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1 –	Dose efetiva devido a exposição à radiação ionizante.....	16
Figura 2 –	Decaimento do $^{134}\text{Cs}$ .....	22
Figura 3 –	Decaimento do $^{137}\text{Cs}$ .....	22
Figura 4 –	Efeitos biológicos causados pelas radiações ionizantes.....	24
Figura 5 –	Deposição de poeira radioativa.....	26
Figura 6 –	Fluxograma do processo de produção de açúcar.....	29
Figura 7 –	Detector HPGe em criostato.....	31
Figura 8 –	Sistema de medidas.....	34
Figura 9 –	Construção dos padrões.....	37
Figura 10 –	Padrões secundários.....	38
Figura 11 –	Marinelli e suas dimensões.....	39
Figura 12 –	Espectro gama com destaque para o FWHM.....	40
Figura 13 –	Reta de Calibração.....	44
Figura 14 –	Gráfico de sobreposição dos espectros das análises dos padrões.....	46
Figura 15 –	Destaque para fotopico característico do $^{137}\text{Cs}$ .....	47
Figura 16 –	Ajuste para obtenção da eficiência em função da densidade do açúcar.....	49
Figura 17 –	Curvas respostas para resoluções do $^{134}\text{Cs}$ em açúcar VHP e refinado.....	52
Figura 18	Curva de eficiência obtida após análise dos padrões de $^{152}\text{Eu}$ .	54
Figura 19 –	Curvas de ajuste para o LD.....	56
Figura 20 –	Curvas de ajuste para o LQ.....	56

## LISTA DE TABELAS

Tabela 1 –	Principais radionuclídeos antrópicos.....	18
Tabela 2 –	Limites radioativos para alimentos em geral.....	27
Tabela 3 –	Dados referentes aos padrões primários utilizados.....	35
Tabela 4 –	Especificações das soluções radioativas líquidas.....	36
Tabela 5 –	Comparação das densidades.....	36
Tabela 6 –	Resoluções obtidas para energia de 661,6 keV do $^{137}\text{Cs}$ .....	45
Tabela 7 –	Parâmetros para verificação da estabilidade do sistema.....	45
Tabela 8 –	Eficiência em energia para o $^{137}\text{Cs}$ em açúcar VHP e refinado....	48
Tabela 9 –	Proporção e densidade dos padrões analisados.....	49
Tabela 10 –	Atividade do padrão para diferentes eficiências.....	50
Tabela 11 –	AMD e AMQ para o $^{137}\text{Cs}$ em açúcar VHP e refinado.....	51
Tabela 12 –	Resoluções para energias do $^{134}\text{Cs}$ em açúcar VHP e refinado.....	53
Tabela 13 –	Eficiências em energia para transições gama características do $^{134}\text{Cs}$ .....	55
Tabela 14 –	AMD e AMQ para o $^{134}\text{Cs}$ em açúcar VHP e refinado.....	57
Tabela 15 –	Média do AMD e AMQ para o $^{134}\text{Cs}$ em açúcar VHP e refinado.....	58
Tabela 16 –	Comparação dos resultados.....	58
Tabela 17 –	Eficiências corrigidas para o $^{134}\text{Cs}$ .....	58

## SUMÁRIO

<b>1</b>	<b>INTRODUÇÃO</b> .....	12
<b>2</b>	<b>OBJETIVOS E METAS</b> .....	14
<b>3</b>	<b>REVISÃO DE LITERATURA</b> .....	15
3.1	RADIOECOLOGIA .....	15
3.2	RADIOATIVIDADE AMBIENTAL .....	15
3.3	RADIOATIVIDADE ARTIFICIAL.....	17
3.4	TESTES NUCLEARES E ACIDENTES RADIOATIVOS.....	19
3.5	RADIOISÓTOPOS DO CÉSIO .....	20
3.6	RISCOS E EFEITOS BIOLÓGICOS DAS RADIAÇÕES IONIZANTES .....	23
3.7	RADIONUCLÍDEOS EM ALIMENTOS .....	25
3.8	AÇÚCAR.....	27
3.9	ESPECTROMETRIA GAMA.....	29
<b>4</b>	<b>MATERIAL E MÉTODOS</b> .....	32
4.1	CARACTERIZAÇÃO DA MATRIZ DE ESTUDO .....	32
4.2	DETERMINAÇÃO DOS PARÂMETROS FÍSICOS.....	32
4.3	CLASSIFICAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AÇÚCAR .....	33
4.4	SISTEMA DE MEDIDAS E ARRANJO EXPERIMENTAL .....	33
4.5	PREPARO DOS PADRÕES SECUNDÁRIOS PARA DETERMINAÇÃO DAS EFICIÊNCIAS EM ENERGIA.....	34
4.6	ANÁLISE DOS PADRÕES RADIOATIVOS DE REFERÊNCIA.....	38
4.7	PARÂMETROS CONSIDERADOS NAS ANÁLISES POR ESPECTROMETRIA GAMA .....	40
<b>4.7.1</b>	<b>Resolução</b> .....	<b>40</b>
<b>4.7.2</b>	<b>Eficiência em Energia</b> .....	<b>41</b>
<b>4.7.3</b>	<b>Limite de Detecção e Quantificação</b> .....	<b>42</b>
<b>5</b>	<b>RESULTADOS E DISCUSSÃO</b> .....	43
5.1	PADRONIZAÇÃO DO MODELO .....	43
<b>5.1.1</b>	<b>Calibração em Energia</b> .....	<b>43</b>
<b>5.1.2</b>	<b>Resolução em Energia para o <sup>137</sup>Cs e Estabilidade do Sistema de Medidas</b> .....	<b>45</b>

<b>5.1.3</b>	<b>Eficiência em Energia para o <sup>137</sup>Cs.....</b>	<b>48</b>
<b>5.1.4</b>	<b>Eficiência em energia em Função da Densidade para o <sup>137</sup>Cs.....</b>	<b>49</b>
<b>5.1.5</b>	<b>Limite de Detecção e Quantificação para o <sup>137</sup>Cs.....</b>	<b>51</b>
<b>5.1.6</b>	<b>Resolução para Energias do <sup>134</sup>Cs .....</b>	<b>51</b>
<b>5.1.7</b>	<b>Eficiência para Energias do <sup>134</sup>Cs.....</b>	<b>53</b>
<b>5.1.8</b>	<b>Limite de Detecção e Quantificação para o <sup>134</sup>Cs.....</b>	<b>55</b>
<b>5.1.9</b>	<b>Comparação dos Resultados Relativos e Absolutos.....</b>	<b>58</b>
<b>6</b>	<b>CONCLUSÃO.....</b>	<b>60</b>
	<b>REFERÊNCIAS.....</b>	<b>61</b>

# 1 INTRODUÇÃO

A radioatividade é um fenômeno espontâneo, onde núcleos instáveis, pela emissão de partículas e/ou radiação eletromagnética buscam a estabilidade. Essas emissões são caracterizadas como ionizantes e podem produzir danos biológicos pela interação com tecidos e/ou órgãos do corpo, devendo ser monitoradas para assegurar seu controle e evitar contaminação do ambiente e exposição da população (CNEN, 2013).

As fontes de radiação ionizantes apresentam origem natural e antrópica, sendo a primeira, caracterizada pelos raios cósmicos, radionuclídeos cosmogênicos e pelos elementos radioativos constituintes da crosta terrestre, que são classificados como radionuclídeos primordiais, cujas meias vidas físicas são compatíveis com a idade terrestre (FROEHLICH, 2009).

As fontes antrópicas, por sua vez, são produzidas artificialmente e apresentam grandes aplicações em várias áreas do conhecimento, destacando-se a medicina, a indústria, agricultura, pesquisa, metrologia, conservação de alimentos, inspeções, controle de contaminantes entre outras (UNSCEAR, 2000).

Algumas aplicações nucleares proporcionaram, no passado, disseminação de alguns radionuclídeos antrópicos para o ambiente, principalmente em decorrência de alguns acidentes e testes nucleares isolados, promovendo nestes casos, a contaminação do ambiente aumentando o risco de exposições internas aos organismos vivos. Sendo assim, o monitoramento de práticas ambientais e exploração dos recursos naturais podem assegurar o controle dessa classe de elementos radioativos (UNSCEAR, 2000).

Aproximadamente 78% da radiação de fundo presente no ambiente provêm das fontes naturais, tendo como principais contribuições, o  $^{40}\text{K}$  e radionuclídeos das séries do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$  com destaque para os isótopos do Rn e seus descendentes, que juntos alcançam 53% de toda radiação global. Estima-se que, a taxa de dose efetiva terrestre atribuída a todas as fontes de radioatividade naturais e artificiais é de aproximadamente 3,1 mSv/ano (UNSCEAR, 2008).

Desde a década de 40, a partir da utilização da fissão nuclear, principalmente em artefatos nucleares, tendo início pelo primeiro teste nuclear norte americano, denominado *Trinity*, em julho de 1945 (BELLUCCI *et al.*, 2013), tem ocorrido a disseminação de resíduos radioativos antropogênicos no ambiente, principalmente através do “*fallout*” (GLASSTONE E DOLAN, 1977).

Os radionuclídeos artificiais, podem se dispersar no ambiente pelas diferentes vias de transferência, como o ar, o solo e a água, sendo incorporados pelos seres vivos, produzindo exposições adicionais, o que pode promover maior probabilidade de efeitos determinísticos (GAVRILESCU *et al.*, 2008), tendo em vista que a contaminação dos organismos vivos por material radioativo é caracterizada pela ingestão, inalação ou absorção (OKUNO, 2013).

Devido à similaridade química com o potássio, alta mobilidade em solos, ampla distribuição, alta solubilidade, longa meia vida física e fácil assimilação pelos animais e vegetais, os isótopos radioativos do césio são considerados alguns dos produtos mais relevantes da fissão nuclear (GIANNAKOPOULOU *et al.*, 2007).

A CNEN que é responsável, no Brasil, pela fiscalização e normatização das aplicações nucleares, estabelece como restrição a comercialização de produtos alimentares atividade específica que sejam superiores a 1,0 Bq/kg, considerando os isótopos do césio,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{134}\text{Cs}$  de forma independente (IPEN, 1993).

Para descrever as assinaturas dos radionuclídeos, devem ser utilizadas metodologias radioanalíticas que possibilitem rapidez e eficiência na obtenção dos resultados. Neste aspecto, um método bastante utilizado é a técnica de espectrometria gama de alta resolução (IAEA, 2003; SANTOS JÚNIOR *et al.*, 2006; CROUTHAMEL *et al.*, 2013). Este tipo de análise, na maioria das vezes, é realizada de maneira não destrutiva, e possibilita investigação multielementar, com rapidez e eficiência nas medidas, garantindo requisitos de controle. Desta forma é possível garantir o monitoramento radiométrico do açúcar assegurando a isenção de radionuclídeos artificiais nesse tipo de alimento, preservando o ambiente e a saúde da população.

O modelo padronizado neste trabalho possibilita, além da qualificação, a quantificação do  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , pela determinação de eficiências em energia em padrões secundários, que possuem características muito semelhantes aos tipos de açúcar analisados.

## 2 OBJETIVOS E METAS

### *Geral*

A determinação e padronização de um modelo semiempírico para investigação radioquímica dos isótopos do céσιο,  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , em amostras de açúcar.

### *Específicos*

- (a) Definir uma metodologia eficiente para realização das análises dos isótopos do céσιο utilizando sistema de espectrometria gama de alta resolução.
- (b) Preparar padrões radioativos secundários com isótopos do céσιο em matrizes semelhantes aos diferentes tipos de açúcar.
- (c) Modelar um algoritmo para avaliação das transições gama do  $^{134}\text{Cs}$  e do  $^{137}\text{Cs}$ .
- (d) Estabelecer um modelo semiempírico para quantificação dos isótopos do céσιο.
- (e) Determinar os parâmetros que contribuem para correções das medidas empíricas.
- (f) Testar o modelo na análise dos diferentes tipos de açúcar produzidos e comercializados no Brasil, a exemplo do demerara, VHP e refinado.

## 3 REVISÃO DE LITERATURA

### 3.1 RADIOECOLOGIA

A Radioecologia é uma ciência multidisciplinar que abrange as várias áreas como a física, química e biologia, e que tem como objetivo, estudar os radionuclídeos no ambiente desde sua origem, seus meios de transferência, sua concentração e os impactos ambientais decorrentes de elementos radioativos naturais com níveis elevados, como também, a contaminação do ecossistema por radionuclídeos artificiais e consequente exposição externa e interna da população (WHICKER, 1982).

Desta forma, é de extrema importância à avaliação dos radionuclídeos artificiais, por se tratar de uma forma de radioatividade antrópica que incrementa na exposição decorrente da radioatividade ambiental.

### 3.2 RADIOATIVIDADE AMBIENTAL

A radioatividade ambiental é derivada dos raios cósmicos, dos radionuclídeos cosmogênicos, das aplicações antrópicas das radiações ionizantes e, principalmente, de elementos radioativos naturais, com a participação do  $^{238}\text{U}$  e do  $^{232}\text{Th}$  e de seus descendentes, além da contribuição do  $^{40}\text{K}$ , os quais estão presentes desde a formação terrestre (UNSCEAR, 2000).

Os raios cósmicos além de contribuir com 11% da exposição à radiação natural (WORLD NUCLEAR ASSOCIATION, 2016), interagem com a atmosfera formando os radionuclídeos cosmogênicos, dos quais, os mais relevantes são:  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$  e  $^{22}\text{Na}$  (TYKVA, 2004). Os níveis de radiação cósmica aumentam significativamente com a altitude, tendo em vista que, o ar, que serve como blindagem, fica cada vez mais rarefeito com a altitude (ZIEGLER, 1996).

A exposição à radiação natural é inevitável, pois os radionuclídeos primordiais estão espalhados por toda a superfície terrestre. As exposições externas são oriundas principalmente dos radionuclídeos emissores de radiação gama. Já as exposições internas são decorrentes da ingestão e inalação de radionuclídeos (KELLER *et al.*, 1990).

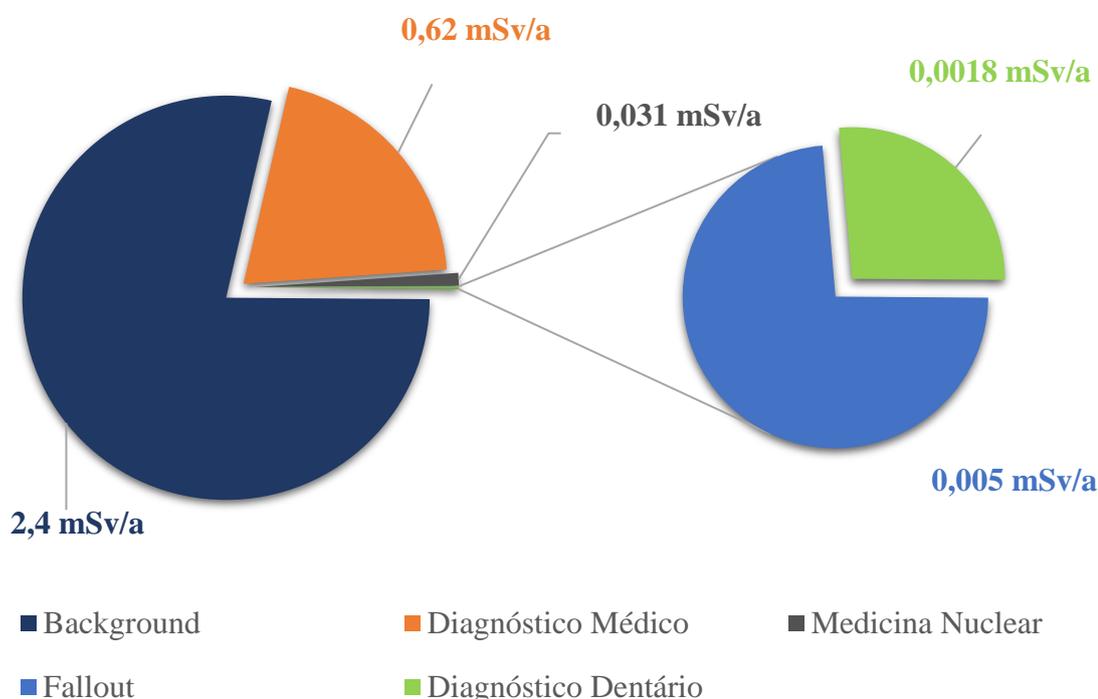
Dentre os radionuclídeos primordiais, os que possuem maior tempo de meia vida física são:  $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{232}\text{Th}$  e  $^{40}\text{K}$ , onde as séries radioativas naturais contribuem mais fortemente para exposições decorrentes das emissões radioativas dos seus descendentes. Os

radionuclídeos da série do  $^{235}\text{U}$  têm pouca influência nessa exposição, portanto podem ser negligenciados no cálculo da dose (UNSCEAR, 2000).

O radionuclídeo que possui maior contribuição para radioatividade natural é o  $^{222}\text{Rn}$ , produto da série radioativa do  $^{238}\text{U}$ . Este radionuclídeo quando comparado com  $^{220}\text{Rn}$ , tem uma relevância radioecológica 20 vezes maior. Junto com seus descendentes, estes dois isótopos do radônio contribuem com cerca de 53% da dose efetiva média mundial proveniente de todas as fontes de radiação natural (ICRP, 1993).

A Figura 1 apresenta a contribuição para exposição dos indivíduos do público às fontes de radiação ionizantes existentes no planeta Terra. Observa-se que, a radiação natural de fundo apresenta maior contribuição nesta exposição, com valor médio de taxa de dose efetiva global de 2,4 mSv/ano, seguida pelas atividades médicas, que em média, contribuem com aproximadamente 0,65 mSv/ano, com maior destaque para utilização de raios-x que alcança 20% de toda exposição global à radiação ionizante (UNSCEAR, 2008).

Figura 1 – Dose efetiva devido a exposição à radiação ionizante



Fonte: (UNSCEAR, 2008).

O “*fallout*” contribui com 0,005 mSv/ano, cerca de 0,16% da dose efetiva total global. Apesar de colaborar com parcela pouco expressiva nas exposições ambientais, é de extrema relevância, pois no período de maior incidência de testes nucleares não existia o controle desta prática, o que incrementou os níveis de radioatividade ambiental em algumas regiões do planeta (MELQUIADES *et al.*, 2004).

Existem regiões no mundo onde os níveis de radioatividade são mais elevados em função de anomalias, que ocorreram naturalmente no processo de formação terrestre ou em função da deposição de elementos radioativos artificiais, advindos de atividades antropogênicas (EISENBUD *et al.*, 1989). Do ponto de vista de proteção radiológica, para garantir a segurança da população e controle do ambiente, faz-se necessário realizar estudos que possibilitem avaliar os níveis de radionuclídeos artificiais.

### 3.3 RADIOATIVIDADE ARTIFICIAL

A radioatividade artificial ocorre pela emissão de radiação ionizante proveniente de elementos antrópicos. A produção destes radionuclídeos pode ser realizada de forma controlada em geradores, aceleradores de partículas e usinas nucleares, ou desordenadamente, como ocorre, nas explosões de ogivas nucleares. A utilização destes radionuclídeos em atividades nucleares geram resíduos radioativos que podem contaminar o ambiente, promovendo um incremento na exposição dos indivíduos (MAZZILLI, 2011).

O mais importante uso da radioatividade artificial se baseia na aplicação de radionuclídeos como “traçadores” no diagnóstico médico, para estudo do metabolismo. Este método consiste na utilização de fármacos agregados a elementos radioativos, os quais são administrados nos pacientes para realização de diagnósticos ou terapia (CANTONE, 2011).

Os radionuclídeos utilizados na medicina nuclear, normalmente possuem tempo de meia vida física curto, são produzidos em aceleradores de partículas ou pelo decaimento de elementos radioativos antrópicos pré-existentes em geradores (SELMAN, 1976). É importante destacar que, todas as aplicações médicas que utilizam material radioativo são controladas e previamente justificadas (ICRP, 2000).

A radioatividade artificial presente no globo terrestre tem origem também nos testes nucleares e acidentes com reatores nucleares ocorridos no passado. Estes possuem menor expressividade, em termos de dose ao público, quando analisados globalmente, entretanto,

promovem a contaminação do ambiente e contribuem para o aumento do risco de exposições aos organismos vivos (UNSCEAR, 2000).

Outros meios de dispersão de radionuclídeos artificiais no ambiente são os efluentes de reatores e usinas de reprocessamento do combustível irradiado, além dos rejeitos radioativos oriundos do uso médico e industrial, que mesmo sendo controlados, podem impactar significativamente no incremento da radioatividade ambiental (FIGUEIRA *et al.*, 1998).

Na Tabela 1, são destacados alguns dos radionuclídeos dispersos no ambiente a partir de testes e acidentes nucleares, que são importantes do ponto de vista de monitoração radioecológica.

Tabela 1 – Principais radionuclídeos antrópicos.

<b>Radionuclídeo</b>	<b>Meia vida</b>
<sup>3</sup> H	12,32 anos
<sup>14</sup> C	5730 anos
<sup>54</sup> Mn	312,5 anos
<sup>55</sup> Fe	2,74 anos
<sup>85</sup> Kr	10,7 anos
<sup>89</sup> Sr	50,55 dias
<sup>90</sup> Sr	28,6 anos
<sup>95</sup> Zr	64 dias
<sup>103</sup> Ru	39,3 dias
<sup>106</sup> Ru	373,6 dias
<sup>125</sup> Sb	2,73 anos
<sup>131</sup> I	8 dias
<sup>133</sup> Xe	5,24 dias
<b><sup>134</sup>Cs</b>	<b>2,07 anos</b>
<b><sup>137</sup>Cs</b>	<b>30 anos</b>
<sup>140</sup> Ba	12,8 dias
<sup>141</sup> Ce	32,5 dias
<sup>239</sup> Np	2,36 dias
<sup>238</sup> Pu	87,7 anos
<sup>239</sup> Pu	24,1 anos
<sup>240</sup> Pu	6,56x10 <sup>3</sup> anos
<sup>241</sup> Pu	14,4 anos
<sup>241</sup> Am	432,7 anos

Fonte: CHOPPIN *et al.*, 1995

Após a extinção dos testes nucleares na superfície terrestre, as maiores fontes de liberação de radionuclídeos artificiais foram os acidentes radiológicos e nucleares (ANJOS *et al.*, 2000).

Considerando os impactos ambientais, dentre os radionuclídeos já citados, destaca-se o <sup>137</sup>Cs e o <sup>90</sup>Sr pelas suas elevadas meia vidas físicas e alto rendimentos na fissão nuclear do <sup>235</sup>U

(FIGUEIRA *et al.*, 1998), cerca de 6% (KONING, 2006), além da alta mobilidade em solos, ampla distribuição, alta solubilidade e fácil assimilação em animais e vegetais (PERKINS *et al.*, 1993).

### 3.4 TESTES NUCLEARES E ACIDENTES RADIOATIVOS

Os testes nucleares tiveram início na década de 40, a partir de uma explosão experimental nomeada “Trinity”, conduzida pelo exército dos EUA, no deserto do Novo México a 100 km da cidade mais próxima do local. Logo em seguida, em 6 de agosto de 1945, em Hiroshima no Japão, existiu a explosão da primeira bomba nuclear utilizada na Segunda Guerra Mundial, “Little Boy”, que foi responsável pela destruição da cidade de Hiroshima e pela morte de aproximadamente 90 mil pessoas (XAVIER *et al.*, 2007).

Três dias após a primeira explosão houve o ataque de mais uma cidade do Japão, com a explosão de uma segunda bomba, “Fat Man”, que levou a morte de mais 40 mil japoneses em Nagasaki e liberação dos produtos da fissão. Até então, nenhuma bomba nuclear havia sido utilizada em guerras, mas os testes nucleares, apesar de subterrâneos, continuam atualmente, com os ensaios conduzidos pela Coreia do Norte (XAVIER *et al.*, 2007). Além das explosões nucleares, existiu também a liberação de resíduos radioativos em acidentes nucleares isolados (XAVIER *et al.*, 2007).

Na cidade de Pripyat, na Ucrânia, em 26 de abril de 1986, ocorreu uma explosão na central nuclear de Chernobyl. Isto desencadeou o maior acidente nuclear já ocorrido. Em função deste acidente foram evacuadas aproximadamente 326.600 pessoas da Bielorrússia, Rússia e Ucrânia. Nesta área foi liberado aproximadamente 85 PBq de  $^{137}\text{Cs}$  (UNSCEAR, 2000; GALLE E PAULIN, 2000).

Um dos mais relevantes acidentes radioativos ocorreu no Brasil, na cidade de Goiânia em setembro de 1987. Neste acidente houve a dispersão de  $^{137}\text{Cs}$  no ambiente, além da contaminação radioativa e exposição à radiação ionizante por alguns indivíduos do público, devido a violação da blindagem de um equipamento de radioterapia (SOUZA CRUZ *et al.*, 1987).

O acidente nuclear mais recente ocorreu em 11 de março de 2011 no Japão. Este desastre aconteceu devido a um tsunami proveniente de um terremoto com epicentro a mais de 100 km da Central Nuclear de Fukushima I. Neste acidente foram dispersados nas áreas adjacente 15

PBq de  $^{137}\text{Cs}$ , aproximadamente um sexto do que foi gerado no acidente de Chernobyl (HONDA *et al.*, 2012).

Os radionuclídeos dispersos no globo terrestre decorrentes dessas explosões e acidentes vêm contribuindo até os dias atuais para aumento no índice de radioatividade ambiental. Desta forma, é de extrema importância o controle contínuo dos níveis de radiação de materiais de consumo humano, para evitar exposições desnecessárias e que podem promover riscos biológicos (XAVIER *et al.*, 2007; CNEN, 2011).

### 3.5 RADIOISÓTOPOS DO CÉSIO

O césio é um elemento químico que pertence ao grupo 1A da tabela periódica e um dos poucos metais que podem ser líquidos a temperaturas a partir de  $28,4^{\circ}\text{C}$ . Possui propriedades físicas e químicas similares ao rubídio, potássio e demais elementos pertencentes a família 1A. Por ser um dos metais mais eletropositivos, possui a capacidade de formar compostos com uma variedade de ânions e ligas metálicas com outros metais alcalinos e o ouro. Também é considerado o metal mais reativo, reagindo com água mesmo em temperaturas muito baixas, mais especificamente a  $-106^{\circ}\text{C}$  (BUTTERMAN, 2004).

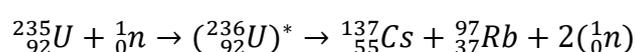
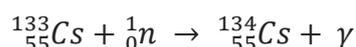
Existem 32 isótopos do césio, onde apenas um deles, o  $^{133}\text{Cs}$ , não é radioativo. Para fins de controle da radioatividade ambiental, os mais relevantes são os produtos de fissão  $^{134}\text{Cs}$  e o  $^{137}\text{Cs}$ , pois apresentam alta percentagem de produção neste tipo de reação nuclear e meias-vidas físicas relativamente altas, quando comparadas aos outros radionuclídeos antrópicos produzidos nestas reações. Sendo que o  $^{137}\text{Cs}$  é muito mais relevante radioecologicamente que o  $^{134}\text{Cs}$  (CHAO E TSENG, 1995). Por apresentar comportamento similar ao potássio (RUNDO, 1964; TAYLOR, 2008), o Césio tende a se concentrar em músculos (FIGUEIRA, 1998).

Compostos de césio natural são levemente tóxicos, não representando perigo químico ambiental significativo. Em termos químicos, o excesso de césio no corpo humano pode levar a hipocalcemia, arritmia e parada cardíaca aguda, mas as concentrações necessárias para provocarem esses sintomas não são encontradas em fontes naturais (MELKINOV, 2010; PINSKY, 1981).

As principais fontes de  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  na superfície terrestre são o “*fallout*” liberado em explosões nucleares e do ciclo do combustível nuclear (KARAKAN, 2011). O césio oriundo deste “*fallout*” nuclear, assim como, o césio natural, possui facilidade de acumulação em plantas (VINICHUK, 2010), e pode ser concentrado na vegetação através de duas formas, a

saber: pelo ar, através de partículas aerossóis, facilmente solúveis, advindas da poeira radioativa, assimiladas diretamente pela flora ou pela deposição da poeira no solo, no qual ocorrerá a transferência, por meio de uma dinâmica solo-planta (SANZHAROVA, 1994).

Conforme citado, os isótopos do céσιο,  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , são produtos de ativação e são obtidos conforme reações a seguir (EPSTEIN E HARRIS, 1968).

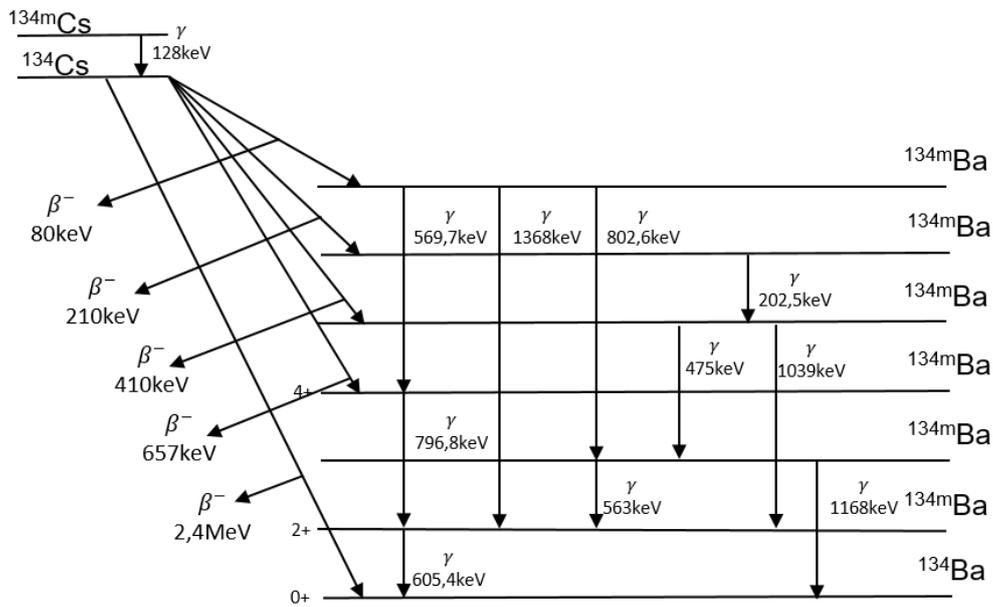


Os isótopos  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  possuem tempo de meia vida física de aproximadamente 2,1 e 30 anos, respectivamente, ambos decaem por emissão beta para os isótopos do bário (FIRESTONE, 1999). Já a meia vida biológica dos isótopos do céσιο nos seres humanos varia entre 50 a 150 dias (RUNDO, 1964).

O  $^{134}\text{Cs}$  foi utilizado em hidrologia, para quantificar céσιο produzido pelas indústrias, uma vez que é produzido apenas por fontes antropogênicas (KENDALL, 2010), enquanto que, o  $^{137}\text{Cs}$ , é utilizado na metrologia com a finalidade de calibrar equipamentos, também é usado em medidores industriais de umidade, densidade, nivelamento e espessura (LOXTON, 2012).

O  $^{134}\text{Cs}$ , decai por emissão beta com diferentes energias. Quando esta energia possui aproximadamente 2,4 MeV, ele decai diretamente para o  $^{134}\text{Ba}$  não radioativo. Se a energia não for suficiente, o  $^{134}\text{Ba}$ , passará por fases metaestáveis intermediárias, onde existirão emissões gama com diferentes energias, possibilitando diversos caminhos, todos resultando em sua forma não radioativa (FIRESTONE *et al.*, 1999). Este processo de decaimento está representado na Figura 2.

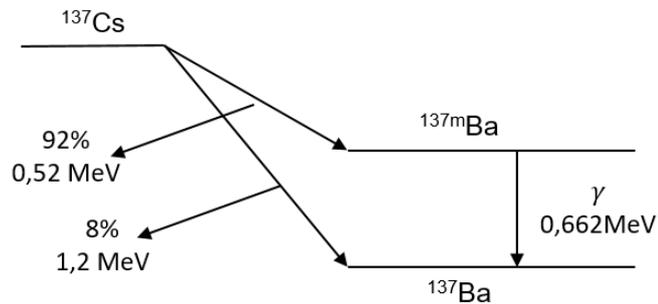
Figura 2 – Decaimento do  $^{134}\text{Cs}$ .



Fonte: adaptado de FIRESTONE *et al.*, 1999.

O decaimento do  $^{137}\text{Cs}$  é similar ao do  $^{134}\text{Cs}$ , porém, de forma mais simplificada, por apenas dois caminhos. Em 92% dos casos, existe a emissão de partícula beta com 520 keV de energia, que dá origem ao [ $^{137}\text{Ba}$ ]\* (Bário metaestável), que por sua vez, emite radiação gama de 661,6 keV, atingindo o  $^{137}\text{Ba}$ . Nos outros 8% dos casos, existe a emissão de beta com energia de 1,2 MeV, que possibilita o decaimento direto para o referido isótopo não radioativo, como está ilustrado na Figura 3 (FIRESTONE *et al.*, 1999).

Figura 3 – Decaimento do  $^{137}\text{Cs}$ .



Fonte: adaptado de FIRESTONE *et al.*, 1999.

Quando metaestáveis, os isótopos do bário emitem radiação gama de energias características, que possibilitam a identificação de seus radioisótopos precursores a partir de análises por espectrometria gama (ERTEL E ZIEGLER, 1990). Para o  $^{137}\text{Cs}$  a transição gama utilizada para sua identificação, é única, com energia de 661,66 keV. No caso do  $^{134}\text{Cs}$  são utilizadas as transições de maior probabilidade de emissão, com energia de 605,4 keV e 796,8 keV.

### 3.6 RISCOS E EFEITOS BIOLÓGICOS DAS RADIAÇÕES IONIZANTES

São riscos intrínsecos a utilização de elementos radioativos em qualquer área, a contaminação por material radioativo e a exposição à radiação ionizante. Estes têm gravidade determinada de acordo com a atividade e tipo de radiação ionizante emitida pelos elementos radioativos (CNEN, 2013).

Quando o elemento radioativo se encontra externo ao organismo, as radiações eletromagnéticas ionizantes, dependendo de sua energia, devem gerar maiores efeitos nas regiões mais internas, pois quando comparadas com as radiações corpusculares, possuem maior poder de penetração. Em contrapartida, os riscos são maiores quando existe a contaminação por elemento radioativo emissor de radiação corpuscular. Pois estas partículas, alfa e beta por exemplo, possuem baixo poder de penetração, sendo em sua maioria, retidas no organismo, contribuindo para uma dose mais elevada nos órgãos internos (ATIX, 2008).

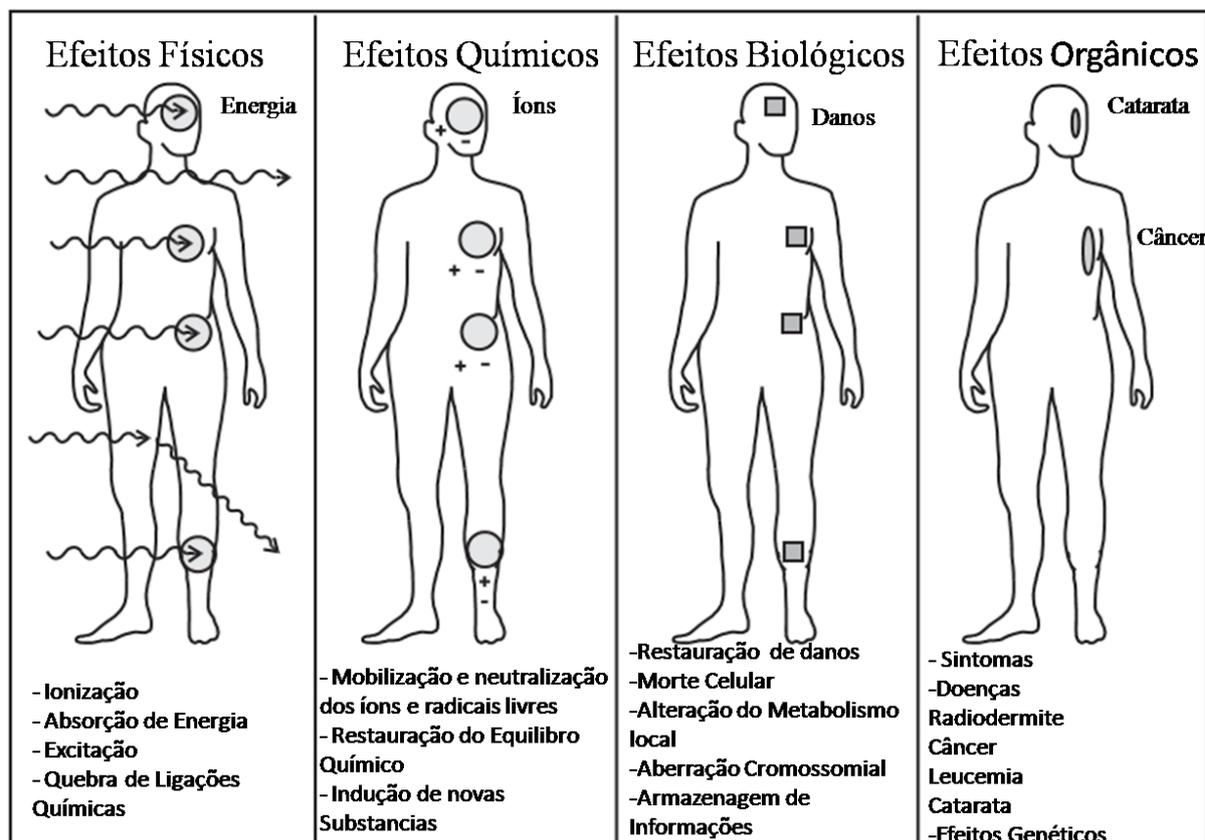
Existem regiões do corpo que possuem maior sensibilidade as radiações ionizantes. Um dos parâmetros que elevam essa fragilidade é o grau de atividade celular. Células reprodutoras, que possuem excessiva multiplicação, são mais suscetíveis ao desenvolvimento desses efeitos, quando comparados com as células nervosas que, quase não se reproduzem (ICRP, 2012; OKUNO, 2013).

Os radionuclídeos podem emitir radiações alfa, beta ou gama, apresentando capacidade distinta de ionização. A radiação alfa possui LET (Linear Energy Transfer – Transferência Linear de Energia) vinte vezes maior do que as radiações beta e gama. Quanto maior for o LET, maiores são os danos causados no deslocamento das radiações pela matéria orgânica (ICRP, 2007).

Todas as radiações ionizantes causam efeitos de degradação celular, estes dependem de uma série de fatores, dentre eles, o tipo de radiação e órgão ou célula irradiada, que já foram citados anteriormente, além do fracionamento e do valor da dose de radiação ionizante. Estes

efeitos ocorrem através de uma sequência que se origina desde a ionização dos átomos constituintes da matéria orgânica irradiada ou quebra direta das moléculas, passando para uma fase química intermediária, na qual existe a interação dos radicais livres previamente formados, culminando nos efeitos biológicos (ATIX, 2008). A sequência destes efeitos pode ser visualizada na Figura 4.

Figura 4 – Efeitos biológicos causados pelas radiações ionizantes.



Fonte: (CNEN, 2003)

Os danos celulares mais significantes são as lesões no DNA, que podem causar a morte celular. Quando existe a quebra do DNA ainda pode existir seu reparo. Quando corretamente reparado, as células voltam a realizar suas funções normais. Se reparados incorretamente, levam a mutações, que conseqüentemente, podem levar a morte celular ou a anomalias celulares que podem provocar a formação de novas células mutantes, dentre estas anomalias pode-se destacar o câncer e as aberrações cromossômicas (CEMBER, 1969).

Para doses elevadas, existem limiares que determinam a aparição de efeitos já conhecidos, como catarata, radiodermite, esterilidade. Estes são os efeitos determinísticos das radiações ionizantes. Para doses aleatórias existe ainda a possibilidade do aparecimento de efeitos

estocásticos, os quais dependem de uma probabilidade anexada ao aumento da dose absorvida pelo organismo (TURNER, 1995). Estas doses podem ter acréscimo pelo consumo de alimentos contaminados por radionuclídeos artificiais.

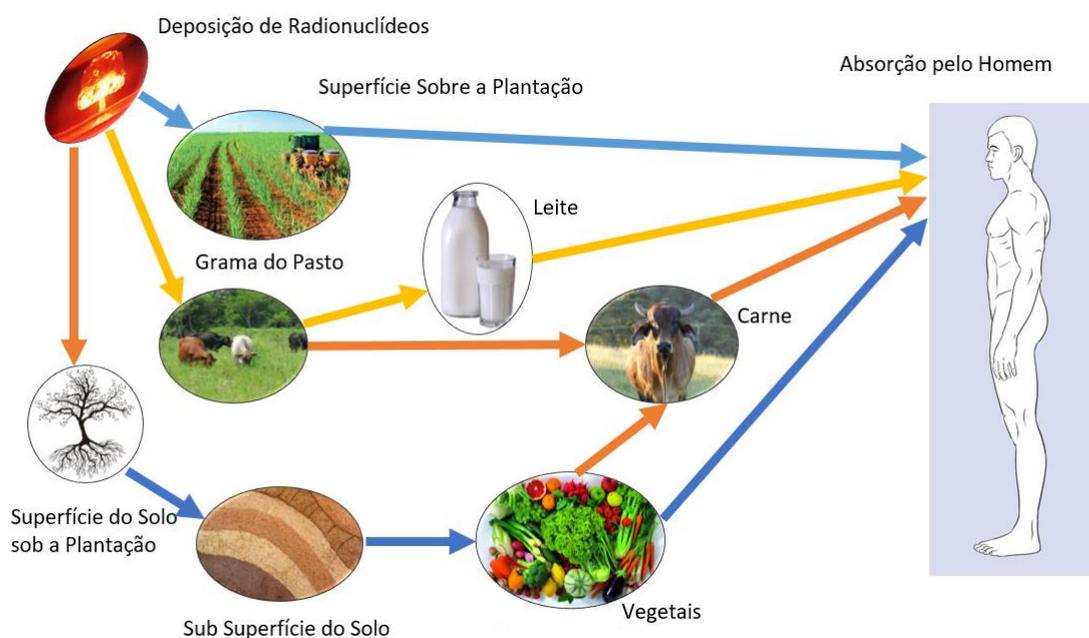
### 3.7 RADIONUCLÍDEOS EM ALIMENTOS

Em decorrência do “*fallout*” de materiais radioativos no ecossistema, além de existir um controle das atividades que utilizam aplicações nucleares, é exigido o monitoramento radiométrico de alguns materiais para exportações, principalmente alimentos, destacando-se o açúcar, por apresentar alto consumo mundial e a possibilidade de contaminação da população consumidora, quando da presença de radioisótopos (EISENBUD; GESELL, 1997).

Quatro anos após o acidente de Chernobyl, os produtos alimentícios oriundos de regiões da Rússia, Bielorrússia e Ucrânia, apresentaram níveis radioativos diferenciados de  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{90}\text{Sr}$ . Dentre estes produtos estão incluídos o leite e seus derivados e a beterraba sacarina, que é uma das matérias primas mais utilizadas para produção de açúcar no mundo (DE RULG, 1992). Devido a dispersão de radionuclídeos artificiais pelo globo terrestre, alimentos como cravo, mamão e pimenta preta já mostraram níveis mensuráveis de  $^{137}\text{Cs}$  no estado da Bahia (VENTURINI, 1999).

Os radionuclídeos artificiais, assim como, os naturais, podem circular pelo ambiente por diferentes caminhos. Estes radionuclídeos podem ser absorvidos pelo solo sob a superfície de plantações e deslocar-se para vegetação, por via radicular ou absorção foliar. Em seguida passam para animais que se alimentam desta vegetação, atingindo o homem pelo consumo de produtos contaminados (MELQUIADES *et al.*, 2004; SANZHAROVA, 1994). Conforme pode ser observado na Figura 5.

Figura 5 – Deposição de poeira radioativa



**Fonte:** adaptado de MELQUIADES *et al.*, 2004; SANZHAROVA, 1994.

O conceito de transferência solo-planta é baseado na existência de uma correspondência entre um radionuclídeo no solo e na planta. O fator de transferência (FT) é usado como parâmetro para modelos de transferência ambiental que são úteis na previsão das concentrações de radionuclídeos em plantas agrícolas para estimar impactos radioativos no homem.

A transferência de um elemento do solo para planta depende de muitos fatores. Entre eles, a característica do terreno, o tipo de solo, a composição do solo, o teor de matéria orgânica, o pH, o tipo de planta, condições de desenvolvimento da agricultura, a atividade agrícola e o clima (SOLECKI, 2002).

Visando monitorar os níveis de  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , assim como, contribuir para observar impactos decorrentes da presença desses radionuclídeos a nível global, a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), órgão brasileiro que fiscaliza as práticas que envolvem aplicações com radionuclídeos, estabeleceu na Resolução 102 de 22 de dezembro de 2010, além de outros limites, os limites radioativos para alimentos, os quais foram classificados em quatro categorias.

Os isótopos do césio, especificamente  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , estão inseridos na categoria 1, na qual foi atribuído limite de  $1 \text{ kBq.kg}^{-1}$  para cada isótopo independente (CNEN, 2011). Estes limites estão representados na Tabela 2.

Tabela 2 – Limites radioativos para alimentos em geral

CATEGORIAS	RADIONUCLÍDEOS	LIMITES (kBq/kg)
Categoria 1	$^{134}\text{Cs}$ , $^{137}\text{Cs}$ , $^{103}\text{Ru}$ , $^{106}\text{Ru}$ , $^{89}\text{Sr}$	1,00
Categoria 2	$^{131}\text{I}$	1,00
Categoria 3	$^{90}\text{Sr}$	0,10
Categoria 4	$^{241}\text{Am}$ , $^{238}\text{Pu}$ , $^{239}\text{Pu}$ , $^{240}\text{Pu}$ , $^{242}\text{Pu}$	0,01

Fonte: CNEN, 2011

A referida tabela apresenta apenas elementos radioativos artificiais derivados depositados por “*fallout*” radioativo e servem unicamente para restrição à comercialização de produtos alimentares, como o açúcar.

### 3.8 AÇÚCAR

A sacarose, que é um glicídio formado por uma molécula de glicose e outra de frutose, o qual possui fórmula química  $\text{C}_{12}\text{H}_{22}\text{O}_{11}$ . (POEL, 1998). Normalmente a sacarose é utilizada como adoçante em alimentos e refrigerantes, na fabricação de xaropes, em açúcar invertido, confeitaria, conservas, geleias, produtos farmacêuticos e caramelo. Esse composto também é um intermediário químico para detergentes, agentes emulsionantes. A produção mundial anual de sacarose é superior a 90 milhões de toneladas, principalmente do suco de cana-de-açúcar (20%) e beterraba açucarada (17%) (NIH, 2018).

O açúcar comercializado é constituído basicamente por sacarose e impurezas e normalmente é extraído da cana-de-açúcar e beterraba. O teor de sacarose é um dos parâmetros utilizados para diferenciar seus tipos, assim como, sua coloração, umidade, sólidos solúveis (Brix), granulometria e teor de cinzas (ANVISA, 1978; MANDRO, 2016).

Existem cinco categorias de açúcar produzidos comercializados atualmente no planeta, dos quais são citados o açúcar mascavo que se enquadra na categoria dos artesanais, os açúcares VHP (Very high polarization) e demerara que estão dispostos na categoria de açúcares brutos. Retomando com os açúcares cristais, refinados e líquidos que possuem divisões inerentes a sua composição. Dentre estes, os mais comercializados no mundo são o refinado, cristal e VHP (MACEDO *et al.*, 2015).

O consumo direto ou indireto de açúcar no Brasil e no mundo representa cerca de 20% da energia total ingerida per capita (SIERVO *et al.*, 2013). Este fator representa anualmente um consumo médio mundial de 23 kg por habitante (ISMA, 2016).

O Brasil é o maior produtor e exportador de açúcar do mundo, com cerca de 26% da produção global, fornecendo mais de 40% do comércio mundial em 2014 (FRAWLEY, 2016).

Dentre os tipos de açúcar produzidos e comercializados no Brasil destaca-se o açúcar VHP, utilizado como matéria prima para produção de diferentes tipos de açúcar para consumo, tendo como seu maior produtor o Brasil que, o direciona para o mercado externo (COSTA *et al.*, 2014).

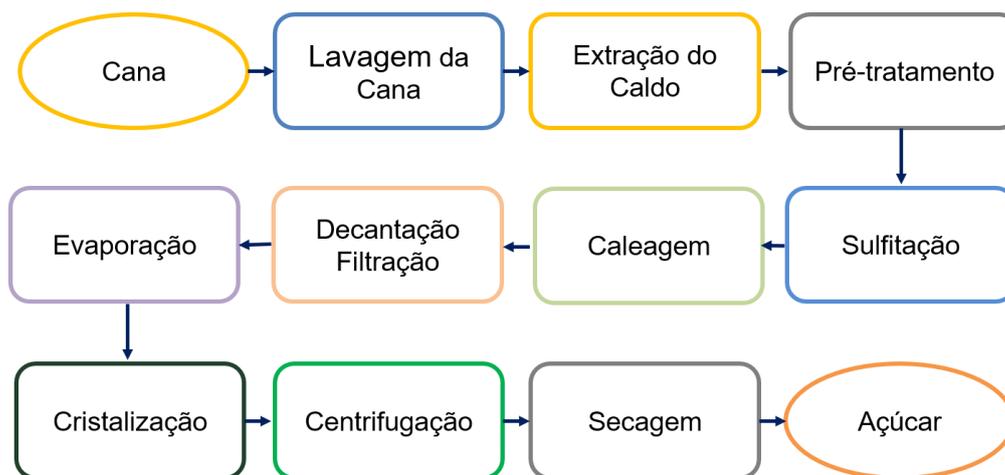
A cana-de-açúcar é um dos principais cultivos do mundo, com sua maior parcela de produção global concentrada no Brasil. Em consequência disto, a cana é considerada a matéria prima de maior utilização para produção de açúcar no Brasil (LOPES, 2017).

Para produção de açúcar, primeiramente é feita a limpeza da cana, para retirar a maioria das impurezas. Em seguida, a cana é moída para extração de um caldo rico em açúcares, que posteriormente será evaporado para dar origem a um xarope concentrado, que será cristalizado, centrifugado e seco, originando o açúcar. Existe a adição de outros processos intermediários, a depender do tipo de açúcar que se quer obter (MACHADO, 2016). O fluxograma desta produção está apresentado na Figura 6.

O caldo da cana-de-açúcar é rico em sacarose, com percentual de 70 a 90 % de sua composição. Este caldo é extraído pela moagem da cana-de-açúcar. Este processo é realizado pela pressão e rotação em rolos que possibilitam a extração de cerca de 93% do caldo (JESUS, 2004).

Quando extraído, o caldo ainda apresenta níveis variáveis de impurezas. Logo é necessário um pré-tratamento através de uma filtração para remoção de impurezas maiores. Na sequência, o caldo passa por um processo de caleagem e sulfitação para remoção de impurezas menores, que podem ser solúveis, coloidais ou insolúveis. Estes processos visam a precipitação, coagulação ou floculação destes resíduos. Em seguida o caldo é decantado e filtrado, para obtenção de uma clarificação (JESUS, 2004).

Figura 6 – Fluxograma do processo de produção de açúcar



Fonte: adaptado de Lopes, 2017

Após os procedimentos de remoção de impurezas, o caldo clarificado é concentrado em evaporadores para obtenção de um xarope que é cristalizado e depois centrifugado para separação dos cristais de sacarose. Posteriormente a sacarose é seca para atingir níveis ideais de umidade para o ensacamento do açúcar (JESUS, 2004).

### 3.9 ESPECTROMETRIA GAMA

Existem vários métodos para determinar radioatividade em diferentes tipos de amostras ambientais. Estes métodos utilizam detectores de radiação. Dentre os mais usados estão os detectores a gás (Geiger-Muller, câmara de ionização e detectores proporcionais), os cintiladores (orgânicos ou inorgânicos) e os detectores semicondutores (TURNER, 2008).

A espectrometria gama é um método de análise que possibilita a qualificação e quantificação de radionuclídeos emissores gama, e vem sendo largamente utilizada para mapeamento ambiental e geológico, tendo em vista que, os ensaios podem ser realizados de forma não destrutiva e com eficácia nos resultados obtidos (SANTOS JÚNIOR *et al.*, 2009).

A técnica consiste na interação da radiação gama dos radionuclídeos naturais ou artificiais presentes na amostra, a partir de efeitos como o fotoelétrico, Compton e Formação de Pares, com o detector. Desta forma existe a conversão destas interações em sinais que são conduzidos a um sistema analisador multicanal (MCA – Multi Channel Analyser). Em seguida, os sinais são separados utilizando recursos computacionais e convertidos em espectro, possibilitando a identificação dos radionuclídeos e suas medidas.

A calibração em energia destes detectores geralmente é feita a partir do uso de fontes pontuais padrões. O método funciona pela correlação das energias conhecidas das fontes com os canais do MCA, o que possibilita a construção de modelos para calibração que permitem qualificar em função da especificidade em energia (ZAPATA, 2003).

Para quantificar a partir da espectrometria gama, é necessária a calibração em eficiência em energia. Para o cálculo destas eficiências podem ser utilizados padrões líquidos certificados que apresentem faixa de energia compatível com as energias em estudo. Nesta etapa os padrões devem ser diluídos em matrizes com densidade semelhantes as matrizes que se deseja estudar. Neste aspecto, ainda é necessário à padronização das geometrias dos recipientes, tempo de contagem, posicionamento no detector e equivalência dos volumes das amostras nos recipientes. A partir do modelo de eficiência por energia, é obtida uma equação para cálculo das eficiências de contagem para determinação dos radionuclídeos de interesse (TZORTIS, 2003).

A espectrometria gama deve ser utilizada, prioritariamente, para análises de fótons com energia acima de 100 keV, pois quando inferior, existe maiores interferências devido à radiação de fundo, alto absorção e efeitos secundários (AMARAL, 1987).

Para minimizar os efeitos das radiações de fundo, outro aspecto importante é o posicionamento da amostra e a blindagem do detector. Desta forma os detectores devem ser blindados com chumbo, e muitas vezes são instalados subterraneamente para evitar a interação da radiação cósmica (MURRAY, 1987).

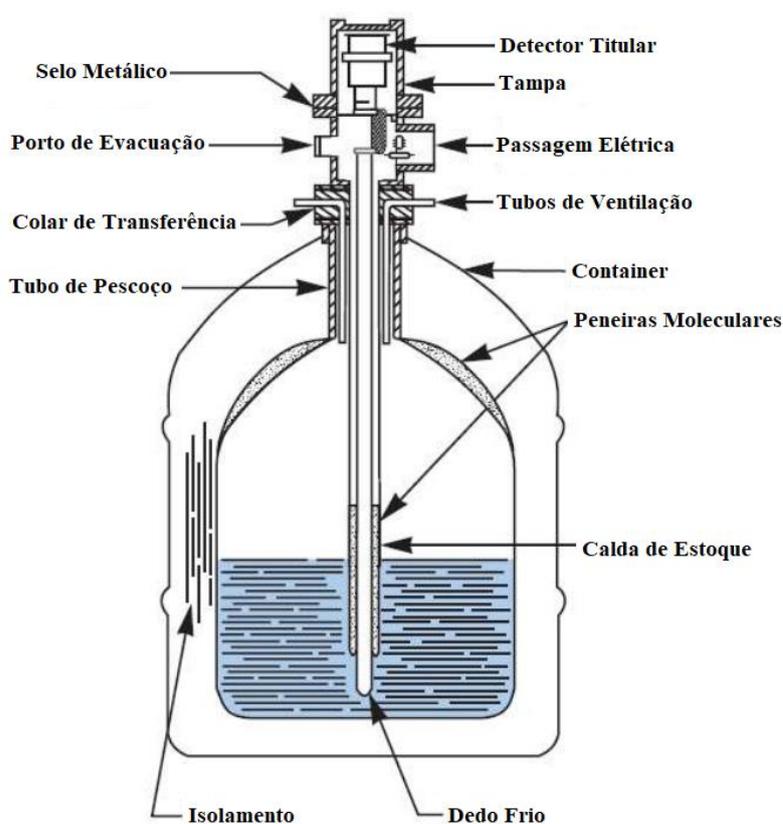
Os detectores que possuem melhor custo-benefício em espectrometria gama são os de Germânio Hiper Puro (SANTOS JÚNIOR *et al.*, 2006). Geralmente estes detectores possuem formato cilíndrico e coaxial, permitindo a análise de volumes maiores de amostras (KNOLL, 1989). Além disso, existem recipientes do tipo Marinelli com geometrias adequadas ao detector (LAVI *et al.*, 2005).

Estes detectores são fabricados a partir de cristais de germânio com alta pureza que, geram elétrons livres em resposta à interação com a radiação ionizante. A amplitude da carga no cristal de germânio tem ligação direta com a energia da radiação gama absorvida. O cristal é um material semicondutor, que serve para passagem de uma tensão de alta polarização. Nestas condições, a carga produzida é deslocada para os extremos opostos do cristal através de um campo elétrico. O pulso elétrico resultante é amplificado e existe a produção de uma tensão de saída à altura do pulso que é proporcional à energia do fóton gama incidente (ZAPATA, 2003).

Uma limitação dos equipamentos, que utilizam detectores do tipo HPGe, é a necessidade de resfriamento constante, com a utilização de nitrogênio líquido, sendo necessário o

preenchimento dos contêineres quase que semanalmente, elevando um pouco o custo das análises (AMARAL, 1994; SANTOS JÚNIOR, 2009). Este resfriamento, realizado em temperatura de  $-196^{\circ}\text{C}$  torna-se necessário para garantia do bandejamento da condutividade. O detector é montado em uma câmara a vácuo que é acoplado a uma haste de cobre imersa ao nitrogênio líquido, garantindo o resfriamento do detector de forma indireta. Pela Figura 7 é possível observar o detector montado no criostato com capacidade para aproximadamente 30 L de nitrogênio líquido.

Figura 7 – Detector HPGe em criostato



Fonte: adaptado de REGUIGUI, 2006.

## **4 MATERIAL E MÉTODOS**

### **4.1 CARACTERIZAÇÃO DA MATRIZ DE ESTUDO**

A metodologia e estratégia de ação utilizada para o desenvolvimento do referido projeto, foi configurado a partir da seleção de matrizes de referência para preparação dos padrões secundários; dopagem das matrizes com padrões radioativos de referência; descrição do sistema de medidas, assim como, o arranjo experimental necessário para obtenção dos resultados.

Considerando a dificuldade de dopar matrizes de açúcar em função de suas propriedades físicas, foi necessário caracterizar fisicamente os diferentes tipos de açúcar que são recebidos para análises no Laboratório de Radioecologia e Controle Ambiental (LARCA) do DEN - UFPE, de forma a selecionar materiais alternativos que apresentassem características físicas e/ou químicas semelhantes as matrizes de açúcar, os quais foram utilizados na construção dos padrões radioativos secundários.

A legislação brasileira estabelece o teor de sacarose como parâmetro de especificação dos açúcares, exceto para o tipo refinado, que deve apresentar outros parâmetros para sua classificação individual, como: resíduo mineral fixo (cinzas), cor e umidade.

No referido estudo, apenas dois parâmetros foram utilizados para classificar o material de referência que foi utilizado como matriz para construção dos padrões radioativos secundários, destacando-se, nesse caso, a classificação granulométrica, densidade.

### **4.2 DETERMINAÇÃO DOS PARÂMETROS FÍSICOS**

Foram determinados densidade e granulometria das amostras, que são parâmetros de maior importância na utilização de espectrometria gama. A densidade relativa foi determinada utilizando-se de procedimento padrão para cálculo de densidade dos sólidos granulados, com uso de proveta e balança de precisão. Já a classificação granulométrica foi realizada de acordo com NBR 7217 (ABNT, 1987) que trata da especificação de agregados, adaptada para o açúcar, obedecendo aos procedimentos e etapas estabelecidas, assim como, uso de curva granulométrica do tipo semi-log.

### 4.3 CLASSIFICAÇÃO DAS AMOSTRAS DE AÇÚCAR

As amostras de açúcar que foram analisadas vêm sendo enviadas ao LARCA por diversas usinas produtoras de açúcar e distribuidores, principalmente aquelas situadas no Nordeste do Brasil, objetivando avaliação radiométrica de acordo com suas safras.

A classificação das amostras de açúcar demerara, VHP e refinado foi realizada com base nos parâmetros químicos industriais fornecidos pelos fabricantes ou distribuidores.

O açúcar VHP apresenta alta polaridade, coloração mais escura, constituição de 99,4% de sacarose, sendo considerado um açúcar bruto, de alta qualidade, o que o faz ser o açúcar mais procurado atualmente, pois é utilizado como matéria prima inicial para produção de outros tipos de açúcar, assim como, na indústria de alimentos (COSTA *et al.*, 2014).

O açúcar demerara possui uma coloração ainda mais escura, trata-se de um produto que não foi refinado, com uma polarização mínima de 96%. Apresenta uma fina película de mel envolvendo seus cristais, desta forma, proporcionando menor solubilidade em meios líquidos quando relacionado com outros tipos de açúcar (CREMA, 2012).

O açúcar refinado é classificado em amorfo de primeira, amorfo de segunda ou granulado. Contém teor de sacarose superior a 99%, granulometria fina, alta solubilidade e coloração branca. É considerado o açúcar mais puro e com melhor aspecto visual, adequando-se ao mercado nacional e internacional (CREMA, 2012).

### 4.4 SISTEMA DE MEDIDAS E ARRANJO EXPERIMENTAL

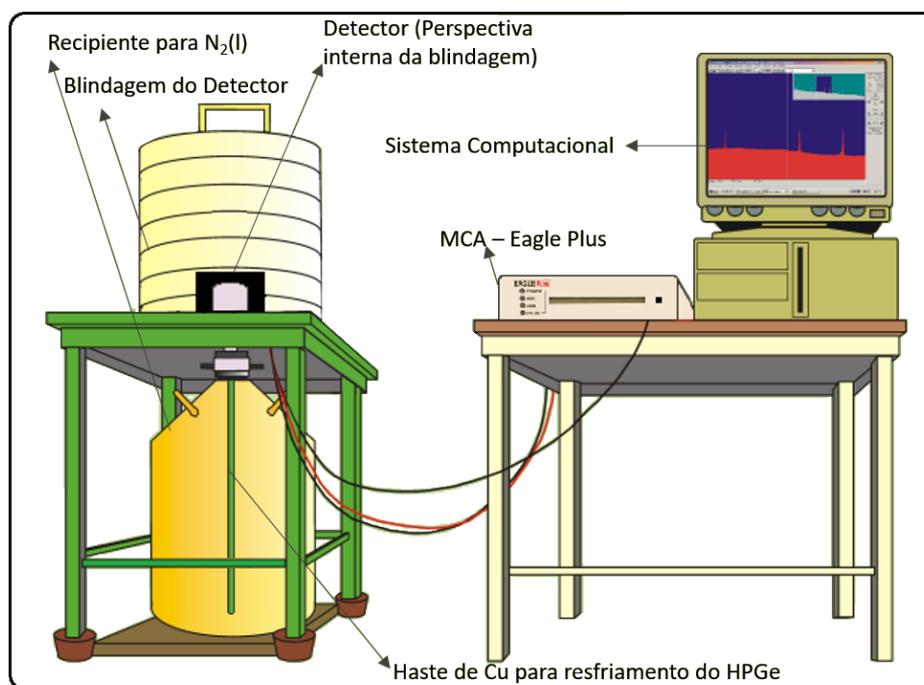
O arranjo experimental foi composto por um espectrômetro gama de alta resolução, com detector do tipo Germânio Hiperpuro e janela de berílio (HPGe-Be), marca: Canberra®, eficiência nominal de 25% e resolução de 1,8 keV para energia de 1.332 keV do  $^{60}\text{Co}$ .

Para minimizar a interferência da radiação de fundo, o detector foi envolvido por uma blindagem de chumbo com cerca de 6 cm de espessura e revestimento interno constituído por camadas de cádmio e cobre, o que diminui o efeito da radiação secundária. O HPGe-Be foi interligado a um sistema de resfriamento que utiliza nitrogênio líquido em temperatura próxima a  $-196\text{ }^{\circ}\text{C}$ .

O sistema foi acoplado a um analisador multicanal (MCA) Eagle Plus com 4.096 canais e a tensão do pré-amplificador ajustada em 3 kV, conforme especificação do fabricante. Para

realizar a manipulação dos espectros foi utilizado o programa computacional Genie-2k<sup>®</sup> da Canberra<sup>®</sup>. O arranjo experimental é ilustrado na Figura 8.

Figura 8 – Sistema de medidas



**Fonte:** Adaptado de Nuclear Physics Laboratory, 2017.

A calibração em energia foi realizada pela correlação dos canais do MCA com as transições gama já conhecidas de fontes pontuais seladas de <sup>241</sup>Am, <sup>133</sup>Ba, <sup>137</sup>Cs, <sup>22</sup>Na e <sup>60</sup>Co, pertencentes ao Laboratório de Metrologia de Radiações Ionizantes (LMRI). Para as medidas, as fontes foram posicionadas diretamente no detector sem interposição de barreiras e analisadas de forma individual durante um período de 3.600 segundos. Esse procedimento permitiu a obtenção de uma função linear para correções necessárias e identificação dos fótons gama, neste caso, correlacionando canal e a energia gama do emissor.

#### 4.5 PREPARO DOS PADRÕES SECUNDÁRIOS PARA DETERMINAÇÃO DAS EFICIÊNCIAS EM ENERGIA

Os materiais de referência que foram selecionados em função das semelhanças físicas com as amostras de açúcar demerara, VHP e refinado, foram utilizados como matrizes para incorporação dos padrões radioativos primários.

Os padrões primários, devidamente certificados pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), que são fontes abertas e líquidas, foram inseridos nas diferentes matrizes de referência para simular amostras de açúcar contendo padrões radioativos emissores de diferentes fótons gama, numa faixa entre 121 keV a aproximadamente 1.408 keV.

Foram utilizados padrões de  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , cujas especificações estão relacionadas na Tabela 3, obedecendo as recomendações da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1991).

Tabela 3 – Dados referentes aos padrões primários utilizados

Fonte Padrão	T <sub>1/2</sub> (ano)	Energia (keV)	γ (%)
$^{152}\text{Eu}$	13,5 ± 0,3	121,8	28,4
		244,7	7,5
		344,3	26,6
		411,1	2,2
		443,9	3,1
		778,9	13,0
		867,4	4,2
		964,1	14,6
		1085,8	10,1
		1089,8	1,7
		1112,1	13,5
		1213,0	1,4
		1299,1	1,6
		1408,0	20,8
$^{137}\text{Cs}$	30,2 ± 0,2	661,6	85,1

**Fonte:** adaptado de TECDOC 619 (IAEA, 1991).

Na Tabela 3 foram apresentadas as energias e probabilidades de emissão gama. Estas probabilidades estão atreladas a estados energéticos dos radionuclídeos, e em alguns casos, uma emissão pode ser acompanhada de outra, desta forma, o somatório destes percentuais pode não ser 100%.

Os padrões de  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , por serem padrões líquidos, existe a impossibilidade da dopagem direta do açúcar, devido sua fácil solubilidade em água. Outro aspecto que inviabiliza a utilização do açúcar como matriz de referência foi a secagem do padrão, que mesmo a baixas temperaturas, muda o aspecto físico e disposição dos grãos do açúcar, interferindo na auto absorção gama.

Neste aspecto foi proposto um método de dopagem do açúcar, com padrões líquidos, que garante a integridade física e química do açúcar após o procedimento. Este método consistiu na produção de padrões radioativos sólidos a partir de padrões líquidos. Desta forma, amostras de

solo com densidade de  $1,475 \text{ g/cm}^3$  foram utilizadas como sólidos para inserção dos padrões líquidos.

As amostras de solo foram inicialmente peneiradas em peneiras MESH de 1 mm e 0,71 mm, para obtenção de granulometria próxima a do açúcar VHP e refinado respectivamente. Em seguida, as amostras foram devidamente quarteadas, separadas em pequenas alíquotas de 100 g e armazenadas em recipientes de polietileno com capacidade para  $210 \text{ cm}^3$ . Na sequência as amostras foram dopadas individualmente com 5 ml de soluções radioativas de  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{137}\text{Cs}$  com o auxílio de pipetas volumétricas de vidro. As especificações das soluções radioativas líquidas são indicadas na Tabela 4.

Tabela 4 – Especificações das soluções radioativas líquidas

Padrão	Atividade Específica	Data de Referência
$^{137}\text{Cs}$	30,0 kBq/L	17/04/2007
$^{152}\text{Eu}$	28,2 kBq/L	10/04/2007

**Fonte:** Próprio Autor

Após a adição dos padrões líquidos, as amostras de solo foram secas em estufa a temperatura de  $65^\circ\text{C}$ . Após equilíbrio térmico com o ambiente, as amostras de solo foram homogeneizadas em sacos plásticos e em seguida, adicionadas 900 g de açúcar VHP e refinado em recipientes separados, finalizando-se as matrizes secundárias que, ao final, apresentaram características físico-químicas muito similares as matrizes de açúcar. As diferenças das densidades dos compostos criados para os tipos de açúcar utilizados estão dispostas na Tabela 5.

Tabela 5 – Comparação das densidades

Matriz	Densidade
Açúcar VHP	$0,8150 \text{ g/cm}^3$
Açúcar Refinado	$0,9114 \text{ g/cm}^3$
Solo	$1,4759 \text{ g/cm}^3$
900 g de Açúcar VHP + 100 g de solo	$0,8811 \text{ g/cm}^3$
900 g de Açúcar Refinado + 100 g de solo	$0,9682 \text{ g/cm}^3$

**Fonte:** Próprio Autor

Segundo a Tabela 5, o açúcar VHP e refinado que foram utilizados no processo, possuem densidades muito próximas das matrizes criadas para suas substituições. Ainda assim foram

realizados, testes com outros materiais, como o Sorbitol, além do solo, constatando-se que a matriz ambiental que se mostrou mais adequada para o processo de dopagem foi o solo.

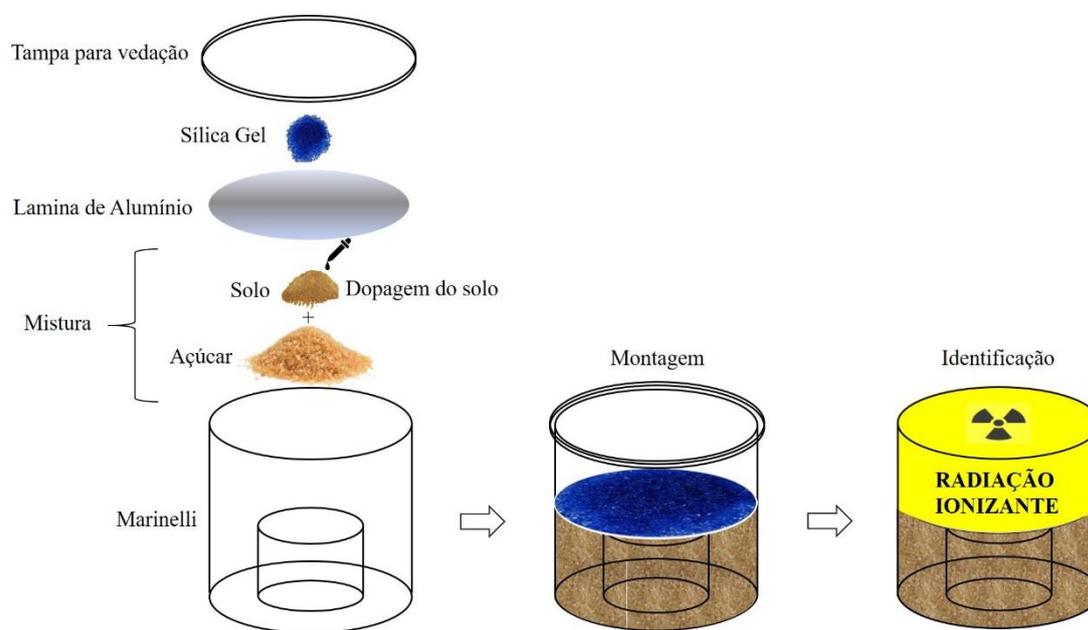
Também foram criados padrões de  $^{137}\text{Cs}$  com diferentes quantidades de solo (50 g e 130 g) misturados ao açúcar VHP, para posterior comparação das diferentes densidades dos padrões em função da eficiência em energia.

Inicialmente era previsto a produção de padrões radioativos em amostras de açúcar VHP, refinado e demerara, no entanto, verificou-se que existe similaridade na composição química, granulometria e densidade quando comparados o açúcar VHP e demerara, tornando-se desnecessário a construção de padrões para os dois tipos de açúcar, optando-se em criar padrões para os tipos com densidades e granulometrias mais diferenciadas, neste caso, VHP e refinado.

As amostras de 1 kg dos padrões criados para o açúcar VHP e refinado foram armazenadas em recipientes do tipo Marinelli. Na superfície superior da matriz foi colocada uma fina camada de alumínio, onde foram depositadas pequenas esferas de sílica gel, para reter a umidade, garantindo a integridade do padrão.

Na Figura 9 é representado o processo de confecção dos padrões, descrito anteriormente e a Figura 10 apresenta os padrões e branco devidamente lacrados e rotulados.

Figura 9 – Construção dos padrões



Fonte: Próprio Autor

Figura 10 – Padrões secundários



**Fonte:** Próprio Autor

Os parâmetros utilizados para distinguir os padrões secundários foram a fonte radioativa utilizada ( $^{137}\text{Cs}$  ou  $^{152}\text{Eu}$ ), atividade total da mistura, proporção em massa da mistura solo - açúcar e data de preparo. Em paralelo também foram construídos brancos para os dois tipos de açúcar. A escolha de rótulos com cores diferentes para cada padrão e branco foi pensada com o objetivo de facilitar a manipulação e análises.

Convém observar que, os padrões foram misturados e adicionados em cada matriz de referência que caracteriza os 2 (dois) tipos de açúcar mais utilizados comercialmente e com maior frequência de exportação.

Estes padrões foram utilizados para estabelecer o mapeamento dos fótons pelo sistema de espectrometria gama, que possibilitou a qualificação dos isótopos do césio. A quantificação dos isótopos do césio também foi possível através da determinação das eficiências em energia para as diferentes emissões gama, características de cada isótopo radioativo utilizado.

#### 4.6 ANÁLISE DOS PADRÕES RADIOATIVOS DE REFERÊNCIA

Na fase de análise dos padrões de referência, foi atribuído tempo de aquisição padronizado em 86.400 segundos. As amostras foram acondicionadas em recipientes do tipo Marinelli, com capacidade para 1,0 kg, devidamente lacrados, com geometria adequada e

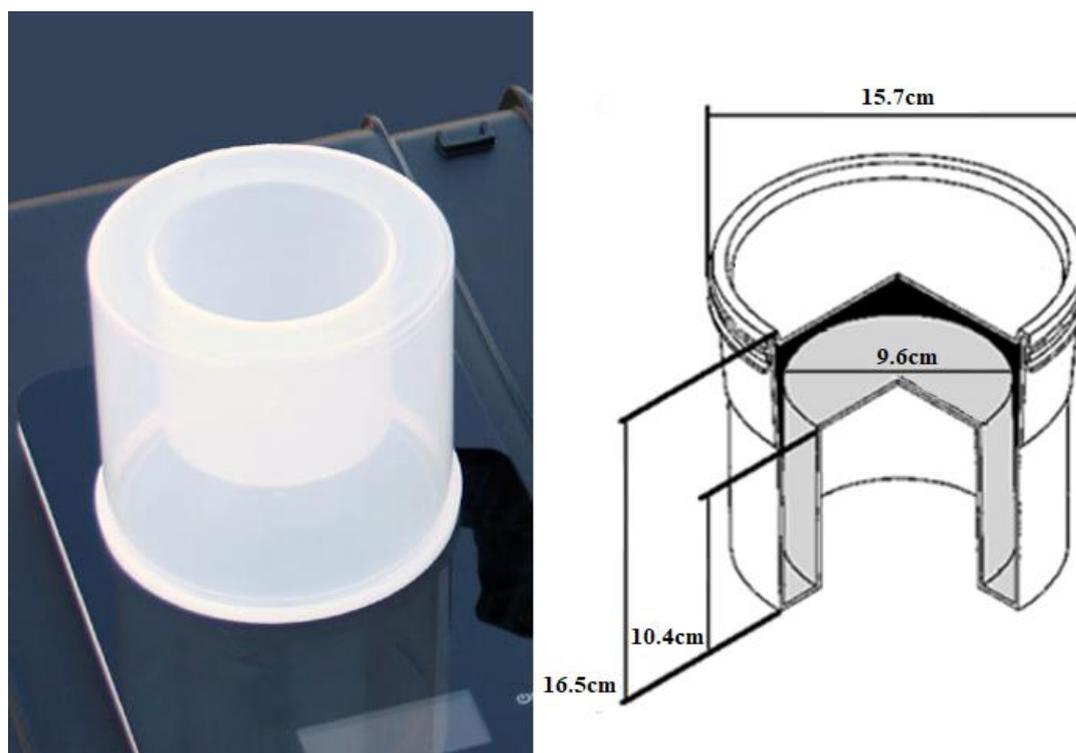
personalizada para posicionamento no volume sensível do detector HPGe-Be, sem interposição de barreiras entre o sistema de detecção e a amostra.

Os recipientes são do modelo 138G-E, compostos por material de polipropileno e vedados com tampa de polietileno. Este modelo possui volume de cerca de 1,6 litros e diâmetro interno da cavidade de cerca de 9,6 cm, que possibilita encaixe ideal ao detector utilizado nas análises. Suas dimensões estão representadas na Figura 11.

O tempo morto foi corrigido automaticamente pelo sistema e as resoluções foram estabelecidas como critério de estudo da precisão do sistema em termos de caracterização dos radionuclídeos.

As principais emissões gama associadas aos isótopos  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ , foram analisadas para investigação desses isótopos. No caso específico do  $^{134}\text{Cs}$ , existe a emissão de mais de um pico de energia. Dessa forma, foram consideradas as transições com maiores probabilidades de emissão.

Figura 11 – Marinelli e suas dimensões



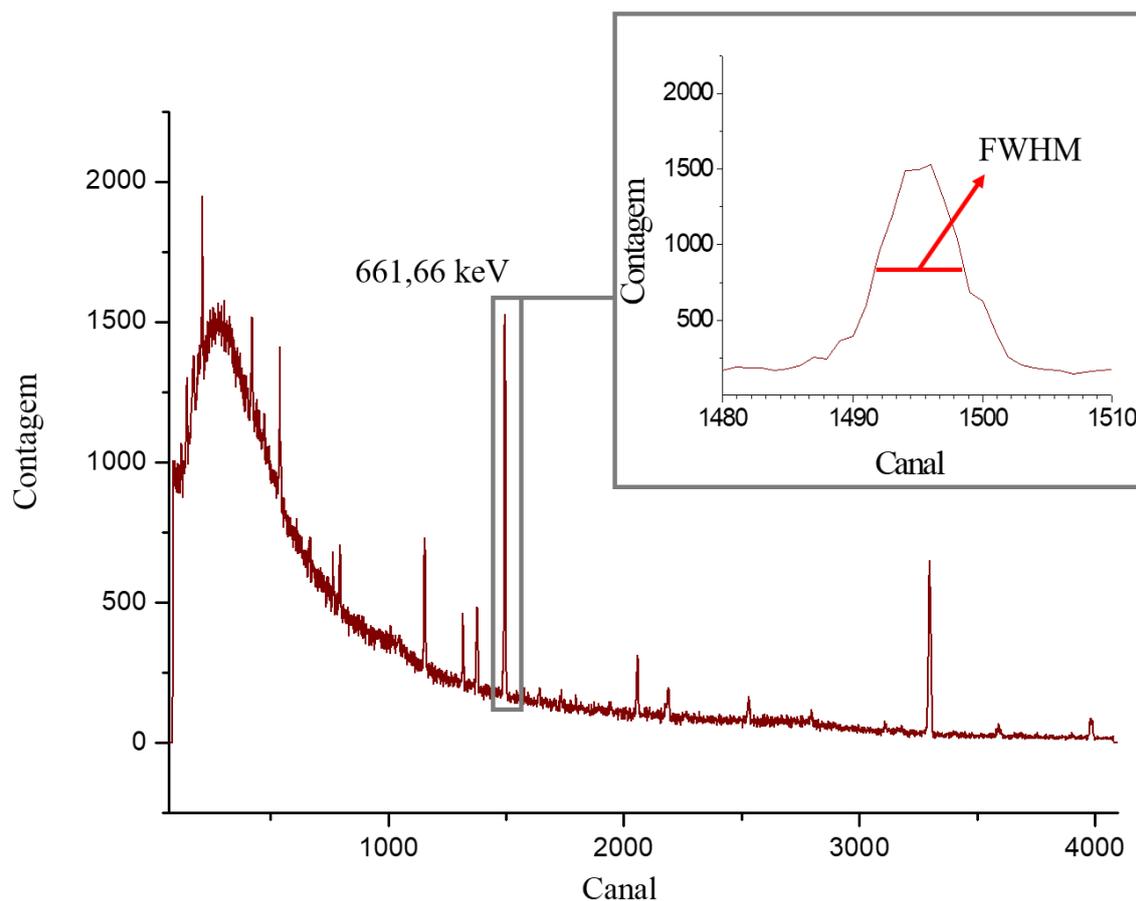
**Fonte:** adaptado de S.E.A., 2017

## 4.7. PARÂMETROS CONSIDERADOS NAS ANÁLISES POR ESPECTROMETRIA GAMA

### 4.7.1 Resolução

A resolução é um parâmetro que possibilita a qualificação dos radioisótopos analisados, sendo calculada pela razão entre a medida da largura do fotopico (FWHM – Full Width at Half Maximum) à meia altura e a energia associada a região de interesse. Quanto mais próximo de zero for o valor dessa relação, maior é a capacidade de diferenciação das energias pelo sistema (KNOLL, 1989). Uma representação ilustrativa da localização do FWHM, para energia 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$ , é apresentada na Figura 12.

Figura 12 – Espectro gama com destaque para o FWHM.



Fonte: Próprio Autor

A resolução define a função resposta do detector e norteia a capacidade de diferenciação das transições gama encontradas no espectro (KNOLL, 1989). O valor da resolução foi obtido a partir da Equação 1.

$$R = \frac{FWHM}{E} \times 100 \quad (1)$$

Onde: R é a resolução em energia, FWHM é a largura do fotopico à meia altura e E é energia do fotopico de interesse.

#### 4.7.2 Eficiência em Energia

A eficiência em energia é um dos parâmetros mais importantes para o presente trabalho. A partir de sua definição foi possível a quantificação dos isótopos do cério,  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ . Sua determinação foi realizada a partir da análise dos padrões secundários e obtenção das contagens para as energias características dos radioisótopos utilizados nos padrões de  $^{152}\text{Eu}$  e  $^{137}\text{Cs}$ .

As atividades e probabilidades dos padrões são conhecidas, e o tempo de contagem e massa da amostra foram padronizados. Dessa forma as eficiências em energia de interesse empíricas foram adquiridas a partir da Equação 2.

$$\varepsilon = \frac{C}{A \times t \times \gamma \times m} \quad (2)$$

Onde:  $\varepsilon$  é a eficiência em energia, C é a contagem da área de um fotopico para determinada energia, A é atividade específica do padrão corrigida para o dia da análise (Bq), t é o tempo de contagem atribuído na análise (s),  $\gamma$  é a probabilidade de emissão gama e m é a massa total do padrão (kg).

Este procedimento foi realizado para energia de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$ , para obtenção de uma eficiência absoluta. No caso das eficiências para energias do  $^{134}\text{Cs}$ , foi construída um modelo de calibração, a partir das energias de maior probabilidade de emissão do  $^{152}\text{Eu}$ , o que permitiu definir a função de ajuste que foi utilizada para caracterizar as eficiências para as diferentes transições do  $^{134}\text{Cs}$ .

A partir das referidas eficiências pode-se encontrar a atividade radioativa do  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  em amostras de açúcar VHP ou refinado, pelo uso da Equação 3.

$$A = \frac{C}{\varepsilon \times t \times \gamma \times m} \quad (3)$$

Onde: A é atividade radioativa da amostra (Bq/kg), C é a contagem da área de um fotopico para determinada energia,  $\varepsilon$  é a eficiência em função da energia, t é o tempo de contagem atribuído na análise (s),  $\gamma$  é a probabilidade de emissão gama e m é a massa total da amostra (kg).

### 4.7.3 Limite de Detecção e Quantificação

O limite de detecção (LD) em espectrometria gama representa menor quantidade de um analito que pode ser distinguido dentro de um intervalo de confiança definido. Este limite determina a segurança do espectrômetro quanto a presença de determinado radionuclídeo em determinada amostra. Já o limite de quantificação (LQ) é um parâmetro que representa o menor valor na contagem das transições gama deste radionuclídeo que pode ser obtida com exatidão. Alguns parâmetros interferem no LD e LQ, tais como: tipo de matriz, geometria e tempo padronizado na análise, tipo de detector, probabilidade da emissão e radiação de fundo.

Para determinação do limite de detecção e quantificação foram realizadas três medidas dos brancos, as quais serviram para obter as contagens das transições gama nas regiões dos fotópicos representantes das energias do  $^{137}\text{Cs}$  e  $^{152}\text{Eu}$ . Estabelecidas as contagens do branco, os limites de detecção e quantificação foram determinados a partir das Equações 4 e 5 (CURRIE, 1968).

$$LD = 2,71 + 4,66\sqrt{N_{BG}} \quad (4)$$

$$LQ = \left\{ 1 + \left[ 1 + \frac{N_{BG}}{12,5} \right]^{\frac{1}{2}} \right\} \quad (5)$$

Onde  $N_{BG}$  indica o número de contagens para o fotópico no branco.

Para obtenção dos limites em atividade da amostra (Bq/kg), foram realizadas transformações e nomeadas AMD (Atividade mínima detectável) e AMQ (Atividade mínima quantificável) conforme Equações 6 e 7.

$$AMD = \frac{LD}{\varepsilon \times t \times \gamma \times m} \quad (6)$$

$$AMQ = \frac{LQ}{\varepsilon \times t \times \gamma \times m} \quad (7)$$

Onde:  $\varepsilon$  é a eficiência em função da energia,  $t$  é o tempo de contagem atribuído na análise (s),  $\gamma$  é a probabilidade de emissão gama e  $m$  é a massa total da amostra (kg).

Assim como no caso da eficiência, os limites de detecção e quantificação, atividades mínimas detectáveis e quantificáveis foram obtidos de forma absoluta para o  $^{137}\text{Cs}$  e relativa para o  $^{134}\text{Cs}$ , a partir da construção de curvas respostas e correlação com as energias do  $^{152}\text{Eu}$ .

## 5 RESULTADOS E DISCUSSÃO

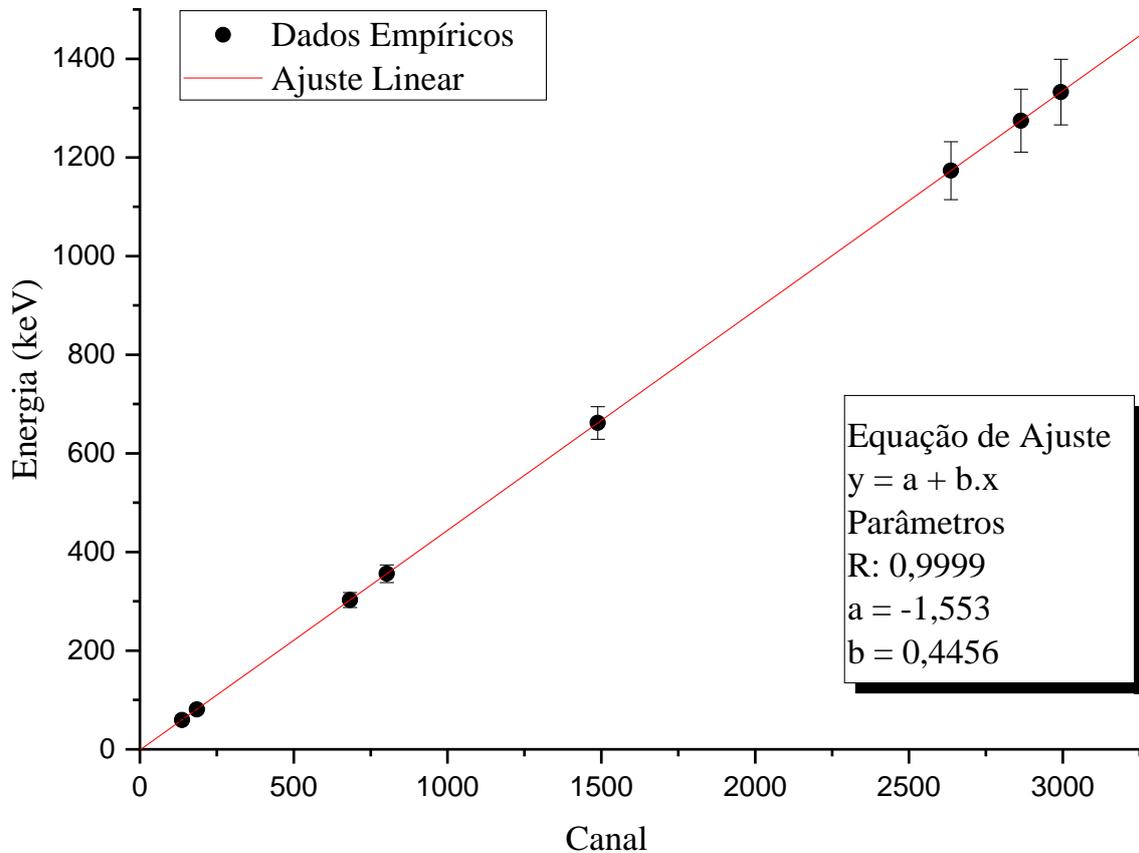
### 5.1 PADRONIZAÇÃO DO MODELO

Como apresentado anteriormente, para determinação de um modelo, com o objetivo de qualificar e quantificar os isótopos do cério,  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  em amostras de açúcar, foram necessários dois caminhos distintos. Os resultados foram obtidos de forma absoluta para o  $^{137}\text{Cs}$  e relativa para o  $^{134}\text{Cs}$ . Para análise do  $^{137}\text{Cs}$  foi utilizado padrão radioativo líquido de mesma constituição isotópica e para o  $^{134}\text{Cs}$  foram construídas curvas de ajuste, adquiridas a partir da análise de padrões de  $^{152}\text{Eu}$ , para correlação com as energias características do  $^{134}\text{Cs}$  e obtenção da resolução, eficiência, limites de detecção e atividade mínima.

#### 5.1.1 Calibração em Energia

A calibração em energia do sistema de medidas com fontes pontuais certificadas de atividades conhecidas, permitiu a construção da função de calibração apresentada na Figura 13.

Figura 13 – Reta de calibração



**Fonte:** Próprio Autor

O resultado mostrou-se bastante satisfatório, com um coeficiente de correlação linear de excelência ( $R = 0,9999$ ). Este coeficiente é um dos parâmetros que mostra que, o sistema estava pronto para realização das análises no período em que elas foram conduzidas. A partir deste ajuste linear, obtido no intervalo de energia que varia de 59,537 a 1.332,502 keV, foi estabelecida a Equação 7, que possibilitou o mapeamento das energias referentes aos fotopicos das transições gama na faixa de canais selecionada para determinação do  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$ .

$$E = 0,4456 \times C - 1,553 \quad (7)$$

Na equação citada acima, E representa à energia da transição gama e C a posição do canal central na região de interesse selecionada para qualificação do radionuclídeo.

### 5.1.2 Resolução em Energia para o $^{137}\text{Cs}$ e Estabilidade do Sistema de Medidas

As resoluções, encontradas na Tabela 6, foram determinadas com base no valor médio do FWHM calculado a partir da medida dos padrões, construídos para os diferentes tipos de açúcar, em sete medidas. Observa-se que, os resultados percentuais diferem muito pouco. Sendo isto o esperado, pois excetuando a variação em energia, outros parâmetros não devem interferir consideravelmente na resolução do sistema.

Tabela 6 – Resoluções obtidas para energia de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$

<b>Energia (keV)</b>	<b>Resolução Açúcar VHP</b>	<b>Resolução Açúcar Refinado</b>
661,6	0,4401 %	0,4395 %

**Fonte:** Próprio Autor

Para verificar a estabilidade do sistema foram realizadas análises de sete padrões radioativos de  $^{137}\text{Cs}$ , com divergência de alguns parâmetros, como: Atividade do padrão, tipo de matriz secundária, massa, tempo de contagem e recipiente para armazenamento. Estes parâmetros podem ser visualizados na Tabela 7.

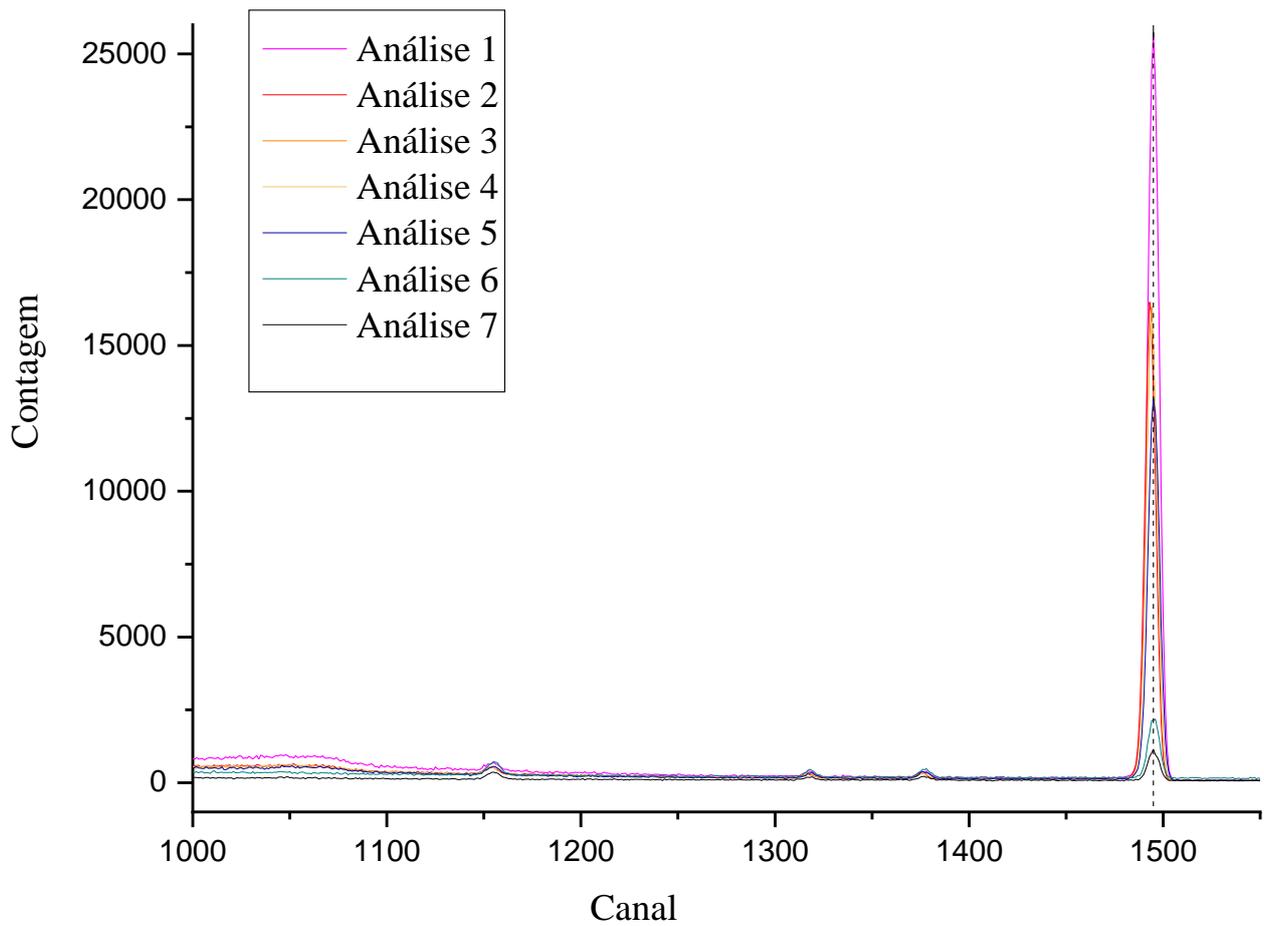
Tabela 7 – Parâmetros para verificação da estabilidade do sistema.

<b>Análise</b>	<b>Tempo (s)</b>	<b>Atividade</b>	<b>Matriz</b>
1	86400	232 Bq	250 g de solo
2	86400	116 Bq	900 g de Açúcar VHP + 100 g solo
3	86400	116 Bq	870 g de Açúcar VHP + 130 g solo
4	86400	116 Bq	900 g de Açúcar Refinado + 100 g de solo
5	86400	116 Bq	250 g de solo
6	86400	11,6 Bq	970 g de Açúcar Refinado + 30 g de solo
7	172800	11,6 Bq	970 g de Açúcar Refinado + 30 g de solo

**Fonte:** Próprio Autor

As matrizes com 250 g de solo foram acondicionadas em recipientes de polietileno com capacidade para 210 cm<sup>3</sup> de amostra, enquanto que, as misturas de açúcar e solo foram armazenadas em recipientes do tipo Marinelli já descritos na metodologia do trabalho. A Figura 14 pode ser observado a sobreposição dos espectros obtidos nas análises.

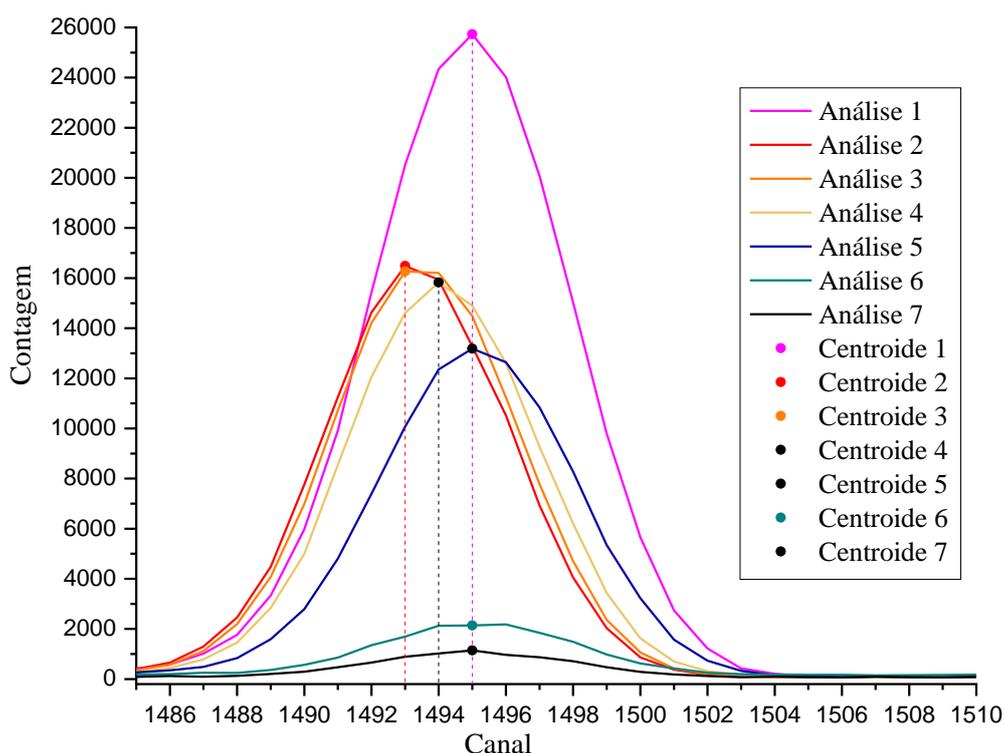
Figura 14 – Gráfico de sobreposição dos espectros das análises dos padrões



**Fonte:** Próprio Autor

Ao analisar os espectros, constata-se que eles possuem comportamentos praticamente idênticos. Para melhor visualização da região do fotopico representativo do  $^{137}\text{Cs}$  (661,6 keV), é apresentada a Figura 15, que possui uma escala menor no eixo dos canais, destacando a região mais relevante para o estudo.

Figura 15 – Destaque para fotopico característico do  $^{137}\text{Cs}$



Fonte: Próprio Autor

Na Figura 15 as linhas tracejadas representam as regiões dos fotopicos centrais (centroide) de cada análise. Notadamente o intervalo que representa a área de contagem permanece o mesmo e, como verificado na ilustração, há uma pequena variação no centroide no intervalo dos canais 1493 a 1495.

A partir da moda, padronizada em 1495, como representação do canal central e seu desvio associado foi calculado o coeficiente de variação de Pearson (CV). Com CV de 0,052 %, verifica-se que a variação é estatisticamente insignificante. Portanto o sistema preservou sua estabilidade durante o período em que foram realizadas as medidas.

Um aspecto importante que pode ser verificado a partir da análise da Figura 15, é que, houve atenuação na contagem de padrões com atividades iguais. Isso pode ser observado na diferença das contagens obtidas nas análises 2, 3, 4 e 5. A contagem realizada na análise 4 possui valor inferior quando comparada com os valores obtidos nas análises 2 e 3. Essa diferença deve ocorrer devido à auto absorção da radiação gama que, como observado, eleva-se quanto maior a densidade da matriz. Observa-se também mudança mais significativa na contagem encontrada na análise 5. Neste caso existiu diferença na massa do padrão e recipiente utilizado na análise. Percebendo-se maior eficiência nos padrões com maior massa e

armazenados nos recipientes Marinelli, que possuem geometria planejada para o detector HPGe. Isto ocorre devido dispersão dos grãos ao redor da área sensível do detector, que possibilita melhor captação da radiação gama.

Diante do observado foram padronizados os recipientes de contagem que possibilitam melhor eficiência nas análises e comprova-se que o HPGe apresenta uma boa resolução ao discriminar os intervalos de energia, proporcionando confiança na distinção de radionuclídeos que apresentem emissões gama com energias próximas.

### 5.1.3 Eficiência em Energia para o $^{137}\text{Cs}$

A partir das eficiências em energia do  $^{137}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado, obtidas pela análise dos padrões em sete repetições, foram calculadas média e desvios padrão, representados na Tabela 8.

Tabela 8 – Eficiência em energia para o  $^{137}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado

<b>Energia (keV)</b>	<b>Eficiência Açúcar VHP</b>	<b>Eficiência Açúcar Refinado</b>
661,6	$0,01251 \pm 0,00026$	$0,01223 \pm 0,00016$

**Fonte:** Próprio Autor

Observa-se que, a amostra do açúcar VHP apresentou uma eficiência em energia para emissão de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$  ligeiramente superior do que o valor encontrado para o açúcar refinado. Nas duas análises foram padronizados os parâmetros. A única diferença está no tipo de matriz secundária utilizada, construída com açúcar VHP e refinado que apresentam pouca diferenciação química, em sua maior parte são constituídos de sacarose, com variação percentual em seu teor muito pequena (96 a 99%). Então observa-se que essa variação pode ocorrer dentre outros fatores por mudanças granulométricas que interferem na densidade destas matrizes.

Para avaliar se existe diferença estatística entre as duas médias, foi realizado o teste t, considerando como hipótese nula ( $H_0$ ) o pressuposto de que não exista variação da eficiência em função da densidade do açúcar. A partir do teste estatístico constatou-se valor empírico (2,0663) inferior ao valor tabelado (2,306) para um nível de confiança de 95%. Portanto aceita-se  $H_0$  e verifica-se que a densidade não muda significativamente a eficiência do açúcar granulado.

### 5.1.4 Eficiência em energia em Função da Densidade para o $^{137}\text{Cs}$

Partindo-se empiricamente da análise de padrões de  $^{137}\text{Cs}$ , de mesma atividade radioativa e diferentes densidades, foi realizado um ajuste linear para determinação direta da eficiência em energia, para transição gama de 661,6 keV em diferentes tipos de açúcar. Os padrões analisados possuem proporções distintas entre massa de solo e açúcar, caracterizando variações nas densidades dos padrões secundários, como observado na Tabela 9.

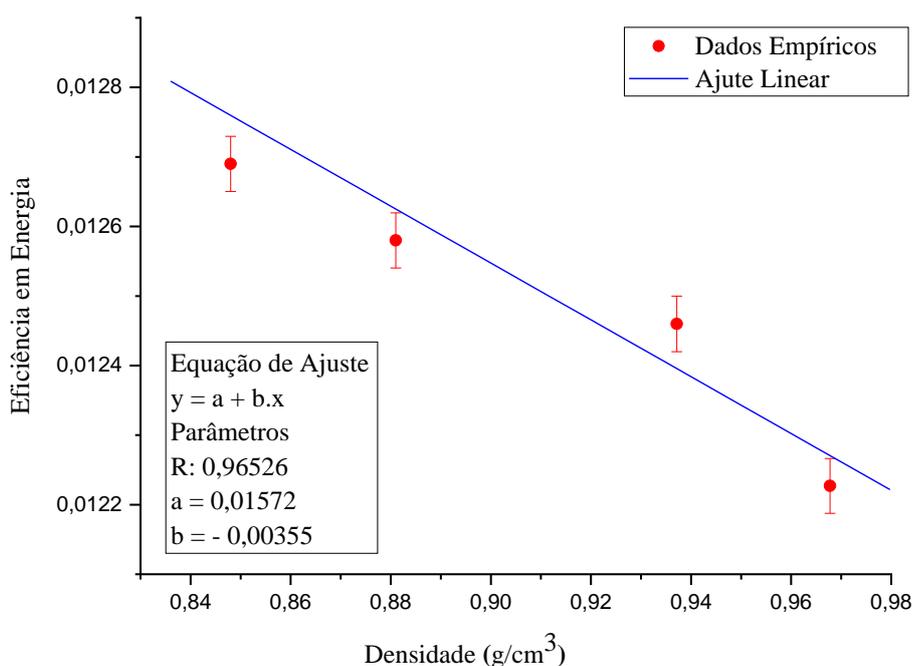
Tabela 9 – Proporção e densidade dos padrões analisados

Matriz	Densidade
950 g de Açúcar VHP + 50 g de solo	0,848 g/cm <sup>3</sup>
900 g de Açúcar VHP + 100 g de solo	0,881 g/cm <sup>3</sup>
870 g de Açúcar VHP + 130 g de solo	0,937 g/cm <sup>3</sup>
900 g de Açúcar Refinado + 100 g de solo	0,968 g/cm <sup>3</sup>

Fonte: Próprio Autor

Após a obtenção das eficiências nas quatro análises, uma função de ajuste foi determinada (Figura 16), o que permitiu a formulação da Equação 8, que relaciona a eficiência com a densidade de açúcar.

Figura 16 – Ajuste para obtenção da eficiência em função da densidade do açúcar



Fonte: Próprio Autor

$$\varepsilon = 0,01572 \times \rho - 0,00355 \quad (8)$$

Onde  $\varepsilon$  é a eficiência em energia para transição gama de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$  e  $\rho$  é a densidade relativa associado ao tipo de açúcar.

Observa-se que, a eficiência em energia tende a diminuir com o aumento da densidade do açúcar. Esse comportamento já vem sendo verificado de forma similar em outros estudos realizados para diferentes matrizes de densidades mais divergentes (HARB, 2008). Esse fenômeno ocorre devido a atenuação da radiação gama em materiais mais densos. Observa-se também um coeficiente de ajuste linear bastante satisfatório (0,96526), promovendo confiança a hipótese.

Em contrapartida, a eficiência só possuirá diferenças significativas quando as densidades das matrizes forem muito distintas, fato não evidenciado quando comparadas as densidades dos diferentes tipos de açúcar granulados recebidos no Laboratório LARCA para as análises, cujos valores variam entre 0,8 a 1,0 g/cm<sup>3</sup>. Esta suposição foi comprovada pelo teste de hipótese e pela análise de um padrão com atividade radioativa conhecida de 116 Bq de  $^{137}\text{Cs}$ . Para quantificar o radioisótopo foram utilizadas, individualmente, as eficiências encontradas nesse trabalho para os diferentes tipos de açúcar. Os resultados obtidos podem ser verificados na Tabela 10.

Tabela 10 – Atividade do padrão para diferentes eficiências

<b>Eficiência</b>	<b>Atividade calculada</b>	<b>Erro</b>
0,01269	115,7 Bq	0,26 %
0,01258	116,7 Bq	0,60 %
0,01246	117,9 Bq	1,64 %
0,01223	120,1 Bq	3,53 %

**Fonte:** Próprio Autor

Observam-se erros aceitáveis no ponto de vista de análises por espectrometria gama. Portanto fica evidenciado que o uso de qualquer eficiência encontrada neste trabalho, para quantificar  $^{137}\text{Cs}$  em açúcar granulado, possibilitará a obtenção de atividades muito próximas da realidade.

### 5.1.5 Limite de Detecção e Quantificação para o $^{137}\text{Cs}$

A partir do algoritmo de obtenção da AMD e AMQ, disposto na metodologia, pela utilização das Equações 4 e 5, respectivamente, foram calculados os resultados para o açúcar VHP e refinado, evidenciados na Tabela 11.

Tabela 11 – AMD e AMQ para o  $^{137}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado

<b>Energia (keV)</b>	<b>AMD (Bq/kg) Açúcar VHP</b>	<b>AMD (Bq/kg) Açúcar Refinado</b>	<b>AMQ (Bq/kg) Açúcar VHP</b>	<b>AMQ (Bq/kg) Açúcar Refinado</b>
661,6	0,13	0,15	0,45	0,50

**Fonte:** Próprio Autor

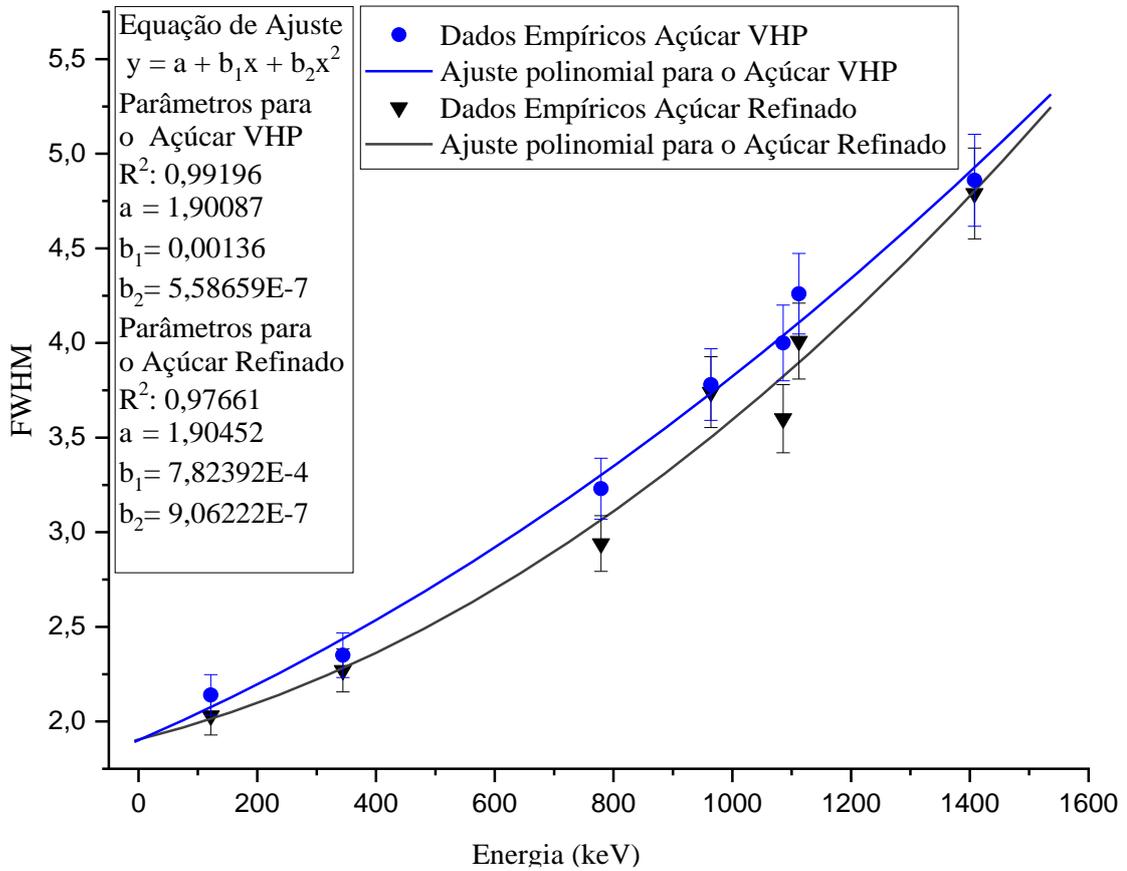
Percebe-se pequena variação nos resultados encontrados para as duas matrizes. As atividades mínimas detectável e quantificável para o açúcar refinado são ligeiramente maiores do que para o VHP, corroborando para uma pequena diferença dos resultados em função da granulometria e densidade da matriz.

As atividades mínimas detectável e quantificável para o  $^{137}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado, determinados segundo metodologia aplicada neste trabalho, estão muito abaixo dos limites radioativos em alimentos ( $1 \text{ kBq.kg}^{-1}$ ), considerados seguros pela CNEN em sua Resolução 102 de 22 de dezembro de 2010. Desta forma propiciando segurança na avaliação deste isótopo radioativo nos tipos de açúcar mais exportados pelo Brasil.

### 5.1.6 Resolução para Energias do $^{134}\text{Cs}$

A partir da construção de curvas respostas (Figura 17) para as emissões e largura do fotopico gama à meia altura, obtidas na análise de padrões de  $^{152}\text{Eu}$ , foi possível estabelecer as Equações 9 e 10 que proporcionaram a determinação das resoluções para os fótons emitidos pelos isótopos do césio em função do tipo de açúcar.

Figura 17 - Curvas respostas para resoluções do  $^{134}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado



Fonte: Próprio Autor

$$R_{REF} = [(1,90452 + 7,82392 \times 10^{-4} \times E - 9,06222 \times 10^{-7} \times E^2)10^2]/E \quad (9)$$

$$R_{VHP} = [(1,90087 + 1,36 \times 10^{-3} \times E - 5,58659 \times 10^{-7} \times E^2)10^2]/E \quad (10)$$

Onde  $R_{REF}$  e  $R_{VHP}$  são as resoluções percentuais para energia (E), de interesse, em açúcar refinado e VHP respectivamente.

Através das referidas equações foi possível a obtenção das resoluções para as emissões gama de maior probabilidade do  $^{134}\text{Cs}$  em amostras de açúcar VHP e refinado. Estas resoluções estão dispostas na Tabela 12.

Tabela 12 – Resoluções para energias do  $^{134}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado

<b>Energia (keV)</b>	<b><math>\gamma</math> (%)</b>	<b>Resolução VHP</b>	<b>Resolução Refinado</b>
475,364	0,0149	0,56 %	0,52 %
563,240	0,0836	0,50 %	0,47 %
569,328	0,1539	0,50 %	0,46 %
604,720	0,9763	0,48 %	0,45 %
795,859	0,8540	0,42 %	0,39 %
801,948	0,0869	0,42 %	0,39 %
1038,61	0,0099	0,38 %	0,36 %
1167,97	0,0179	0,36 %	0,35 %
1365,18	0,0302	0,35 %	0,34 %

**Fonte:** Próprio Autor

Observa-se na Figura 17, os dois ajustes possuem comportamento quase idêntico. A curvatura é ligeiramente mais acentuada para o açúcar refinado. Nos dois casos a resolução melhora com o crescimento da energia das transições gama.

Para avaliar se existe diferença estatística entre os valores médios do FWHM, foram realizadas sete análises para cada padrão de  $^{152}\text{Eu}$ . A partir do teste t, considerando como hipótese nula ( $H_0$ ) o pressuposto de que não exista variação do FWHM em função do açúcar analisado. Foi obtido valor empírico de 1,241 inferior ao valor tabelado 2,179 para um nível de confiança de 95%. Portanto aceita-se  $H_0$ , comprovando que não existe diferenças significativas na resolução do equipamento com a mudança da matriz.

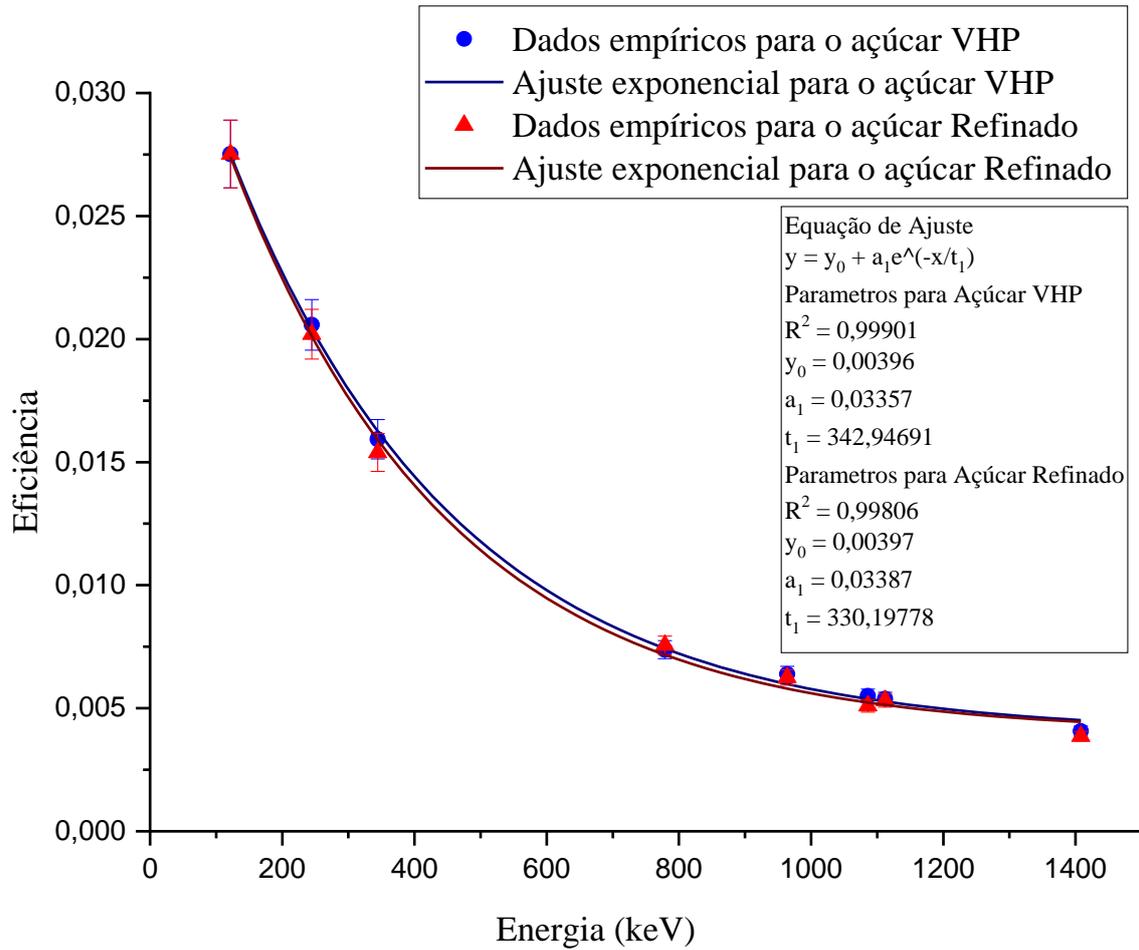
É importante verificar que, os ajustes possuem excelentes coeficientes de determinação ( $R^2$ ), muito próximos de 1. Desta forma os resultados para as resoluções das energias para o  $^{134}\text{Cs}$ , podem ser obtidas com confiança.

Como observado nos resultados dispostos na Tabela 13, as resoluções encontradas para energias do  $^{134}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado, possuem comportamento similar aos valores encontrados para  $^{137}\text{Cs}$ , nas mesmas condições.

### 5.1.7 Eficiência para Energias do $^{134}\text{Cs}$

As eficiências para as energias características do  $^{134}\text{Cs}$  foram obtidas a partir de um ajuste exponencial (Figura 18), a partir das eficiências absolutas verificadas para as energias do  $^{152}\text{Eu}$ . O ajuste permitiu estabelecer as equações 11 e 12, que foram utilizadas para determinar, de forma relativa, as eficiências de interesse, as quais foram descritas na Tabela 13.

Figura 18 – Curva de eficiência obtida após análise dos padrões de  $^{152}\text{Eu}$



Fonte: Próprio Autor

$$\mathcal{E}_{VHP} = 0,00396 + 0,03357 e^{(-E/342,94691)} \quad (11)$$

$$\mathcal{E}_{REF} = 0,00397 + 0,03387 e^{(-E/330,19778)} \quad (12)$$

Onde  $\mathcal{E}_{VHP}$  e  $\mathcal{E}_{REF}$  são as eficiências para energia (E), de interesse, em açúcar VHP e refinado respectivamente.

Observa-se que, os ajustes das curvas foram excelentes, com coeficientes quadráticos de 0,99901 para análise do açúcar VHP e 0,99806 para o açúcar refinado.

Tabela 13 – Eficiências em energia para transições gama características do  $^{134}\text{Cs}$

<b>Energia (keV)</b>	<b>Eficiência VHP</b>	<b>Eficiência Refinado</b>	<b>Média</b>	<b>Desvio</b>
475,4	0,012354	0,011998	0,012176	0,00025
563,2	0,010457	0,010122	0,010289	0,00024
569,3	0,010342	0,010009	0,010176	0,00024
604,7	0,009716	0,009396	0,009556	0,00023
795,9	0,007257	0,007011	0,007134	0,00017
801,9	0,007199	0,006956	0,007077	0,00017
1038,6	0,005584	0,005428	0,005506	0,00011
1168,0	0,005074	0,004955	0,005015	0,00008
1365,2	0,004587	0,004512	0,004550	0,00005

**Fonte:** Próprio Autor

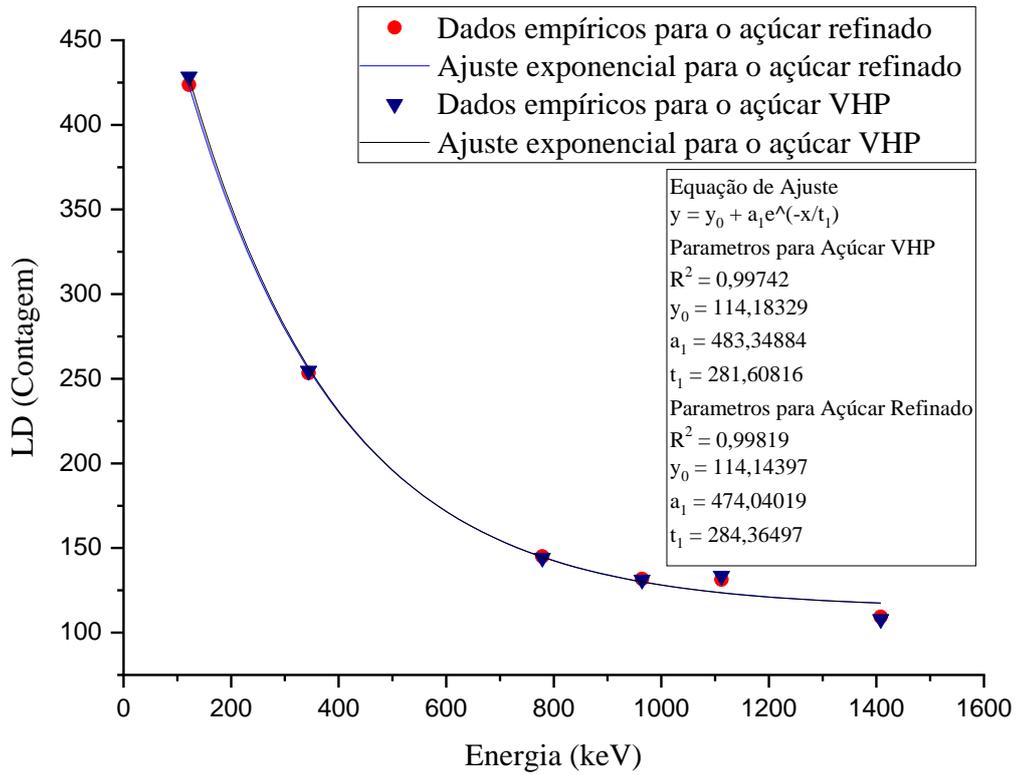
Assim como apresentado nos resultados da avaliação do  $^{137}\text{Cs}$ , as diferenças entre as eficiências em energia encontradas para açúcar VHP e refinado são desprezíveis. Pois quando calculadas as atividades do  $^{134}\text{Cs}$  em qualquer tipo de açúcar granulado, a partir de qualquer eficiência em energia encontrada no presente trabalho, não existe mudança considerável. Contudo, quanto mais próximos os resultados forem da realidade mais confiável é o método. Condição que justifica o aperfeiçoamento da metodologia em busca da excelência.

Propõe-se o uso do valor médio entre as eficiências, uma vez que o açúcar VHP e refinado representam os extremos, deste tipo de matriz, em termos de densidade. Observando que, como comprovado nesse trabalho, a densidade é o parâmetro que mais influência na eficiência em açúcar granulado.

### 5.1.8 Limite de Detecção e Quantificação para o $^{134}\text{Cs}$

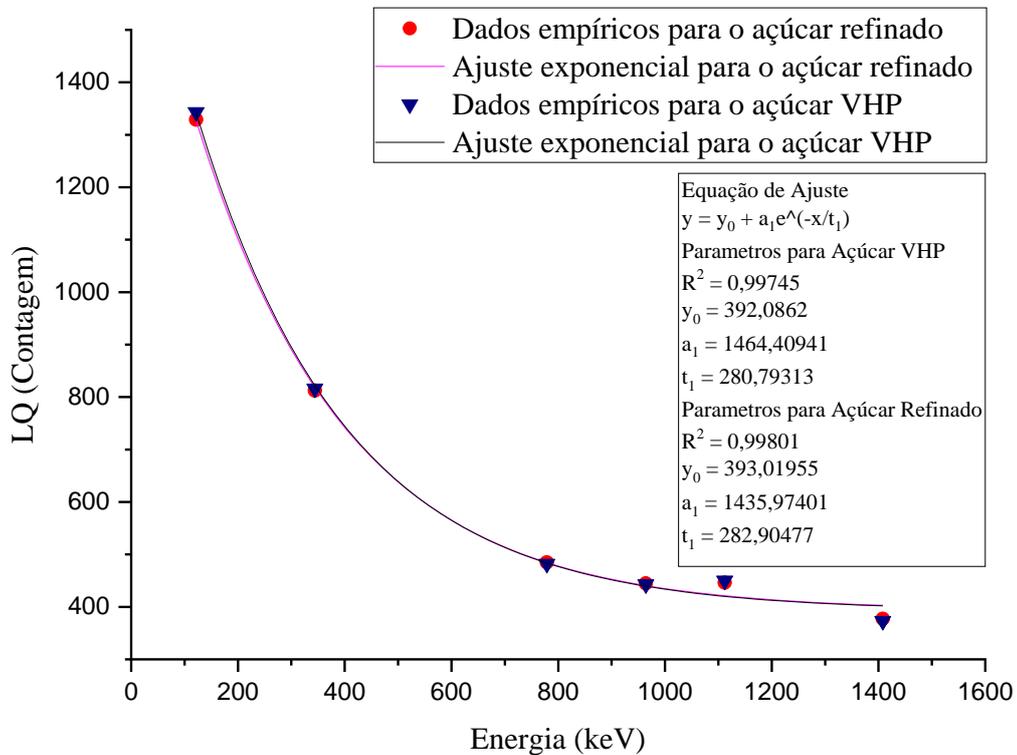
Como observado previamente, os limites de detecção e quantificação para o  $^{134}\text{Cs}$  foram estabelecidos, de forma relativa, como todos os outros resultados adquiridos para o isótopo supracitado. Desta forma, a disposição das curvas de ajuste realizadas para o LD e LQ podem ser visualizadas nas Figuras 19 e 20 nessa ordem.

Figura 19 – Curvas de ajuste para o LD



Fonte: Próprio Autor

Figura 20 – Curvas de ajuste para o LQ



Fonte: Próprio Autor

Os ajustes possuem comportamento similar para as duas matrizes analisadas e coeficientes de correlação quadrática muito bons. A partir dos parâmetros adquiridos nestes ajustes, representados nos blocos das Figuras 19 e 20, foram desenvolvidas as equações (13, 14, 15 e 16) que possibilitaram alcançar o LD e LQ, em açúcar VHP e refinado, para energias de maior probabilidade do  $^{134}\text{Cs}$ . Estes resultados foram convertidos em atividade específica e disponibilizados na Tabela 14.

$$LD_{VHP} = 114,18329 + 483,34884e^{(-E/281,60816)} \quad (13)$$

$$LD_{REF} = 114,14397 + 474,04019e^{(-E/284,36497)} \quad (14)$$

$$LQ_{VHP} = 392,0862 + 1464,40941e^{(-E/280,79313)} \quad (15)$$

$$LQ_{REF} = 393,01955 + 1435,97401e^{(-E/282,90477)} \quad (16)$$

Onde  $LD_{VHP,REF}$ ,  $LQ_{VHP,REF}$  são os limites de detecção e quantificação para energia (E), de interesse, em açúcar VHP e refinado.

Tabela 14 – AMD e AMQ para o  $^{134}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado

<b>Energia (keV)</b>	<b><math>\gamma</math> (%)</b>	<b>AMD VHP (Bq/kg)</b>	<b>AMD Refinado (Bq/kg)</b>	<b>AMQ VHP (Bq/kg)</b>	<b>AMQ Refinado (Bq/kg)</b>
604,7	0,9763	0,2086	0,2158	0,6872	0,7110
795,9	0,8540	0,2672	0,2422	0,7823	0,8115

**Fonte:** Próprio Autor

Para identificar atividades mínimas mais representativas do  $^{134}\text{Cs}$ , foram realizadas médias ponderadas para o AMD e AMQ individualmente, considerando a probabilidade de emissão gama como fator de ponderação. Os valores encontrados estão dispostos na Tabela 15.

Tabela 15 – Média do AMD e AMQ para o  $^{134}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado

<b>Açúcar</b>	<b>AMD (Bq/kg)</b>	<b>AMQ (Bq/kg)</b>
VHP	0,236	0,732
Refinado	0,228	0,758

**Fonte:** Próprio Autor

Observa-se AMD e AMQ para o  $^{134}\text{Cs}$  em açúcar VHP e refinado muito próximos, inferiores aos resultados encontrados para o  $^{137}\text{Cs}$ , e bem abaixo dos limites atribuídos pela CNEN.

### 5.1.9 Comparação dos Resultados Relativos e Absolutos

Para verificar se os resultados obtidos para o  $^{134}\text{Cs}$  podem ser considerados confiáveis, foi realizado um estudo comparativo entre os métodos relativo, utilizado para avaliação do  $^{134}\text{Cs}$ , e absoluto empregado na avaliação do  $^{137}\text{Cs}$ . Nesta comparação foram utilizadas as médias das eficiências obtidas em açúcar VHP e refinado, observando os valores encontrados para energia de 661,6 keV do  $^{137}\text{Cs}$ , nos dois métodos. Os resultados da comparação podem ser visualizados na Tabela 16.

Tabela 16 – Comparação dos resultados

<b>Parâmetro</b>	<b>Resultado Absoluto</b>	<b>Resultado Relativo</b>	<b>Erro</b>
Eficiência	0,01237	0,008686	29%

**Fonte:** Próprio Autor

Verificam-se erros significativos entre os dois métodos, próximos de 30%. Diante da alta discrepância entre os resultados, propõe-se a utilização de um fator de correção (1,424) para eficiência relativa, para aproximá-la da eficiência absoluta, que é mais confiável em termos de espectrometria gama. Os valores corrigidos podem ser visualizados na Tabela 17.

Tabela 17 – Eficiências corrigidas para o  $^{134}\text{Cs}$

<b>Energia (keV)</b>	<b>Eficiência relativa</b>	<b>Eficiência corrigida</b>
604,7	0,009556	0,013608
795,9	0,007134	0,010159

**Fonte:** Próprio Autor

O uso do fator de correção melhorou a eficiência média em energia das transições gama de maior probabilidade de emissão do  $^{134}\text{Cs}$ , possibilitando maior confiança na avaliação do  $^{134}\text{Cs}$  em amostras de açúcar.

## 6 CONCLUSÃO

Um método eficiente de dopagem do açúcar com padrões radioativos líquidos foi padronizado.

O trabalho permite a verificação das eficiências em energia para o  $^{137}\text{Cs}$ , isótopo mais relevante do céscio, em diversos tipos de açúcar granulados de forma direta, a partir da correlação com suas densidades, desde que utilizada mesma metodologia do presente trabalho.

A metodologia descrita permitiu melhorias nas análises de açúcar executadas no LABRAN, a partir da padronização de um modelo semiempírico que permite a quantificação de  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  em açúcar granulado com maior confiança.

Existe diferença significativa entre os métodos relativo e absoluto, constatando-se que os valores de atividade, encontrados a partir das eficiências obtidas nas análises dos padrões de  $^{137}\text{Cs}$ , possibilitam resultados mais próximos da realidade.

O arranjo experimental e os modelos aplicados nas análises quantitativas do  $^{134}\text{Cs}$  e  $^{137}\text{Cs}$  permitiram obter resultados eficientes e atividades mínimas detectadas bem abaixo dos valores recomendados em alimentos.

## REFERÊNCIAS

AMARAL, R. S. **Dose na população da região urano-fosfática Pernambucana, devida a presença de urânio e  $^{226}\text{Ra}$  nos cultivares.** 1994. Tese de Doutorado. Tese de Doutorado, IPEN/CNEN-USP, São Paulo, Brasil.

AMARAL, R. S. **Determinação de Urânio na Fosforita por Meio de Medidas Radiométricas e Análise por Ativação.** 1987. Tese de Doutorado. Dissertação (Mestrado em Ciências e Tecnologia Nuclear), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife.

ANJOS, R. M. *et al.* The study of Goiânia radiological accident in the modern physics teaching. **Rev. Bras. de Ensino de Física**, v. 22, p. 60-68, 2000.

ATTIX, F. H. **Introduction to radiological physics and radiation dosimetry.** John Wiley & Sons, 2008.

BELLUCCI, J. J. *et al.* Distribution and behavior of some radionuclides associated with the Trinity nuclear test. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 295, n. 3, p. 2049-2057, 2013.

BRASIL, ANVISA. Agência Nacional da Vigilância Sanitária. Resolução–CNNPA nº 12, de 1978. **Diário Oficial da União.**

BUTTERMAN, W. C.; BROOKS, W. E.; REESE, R. G. Cesium. **Mineral Commodity Profiles**, p. 1-10, 2004.

CANTONE, M. C.; HOESCHEN, C. The Role of Radiation Physics in Nuclear Medicine. In: **Radiation Physics for Nuclear Medicine.** Springer, Berlin, Heidelberg, 2011. p. 3-5.

CASTRO, L. P. de. **Radionuclídeos naturais e  $^{137}\text{Cs}$  em cogumelos comestíveis comercializados em São Paulo-Brasil.** 2008. Tese de Doutorado. Universidade de São Paulo.

CEMBER, H. *et al.* Introduction to health physics. **Introduction to health physics.**, 1969.

CHAO, Jiunn-Hsing; TSENG, Chia-Lian. Determination of  $^{135}\text{Cs}$  by neutron activation analysis. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, v. 372, n. 1-2, p. 275-279, 1996.

CHOPPIN G. R., RYDBERG J., LILIENZIN J. O., **Radiochemistry and Nuclear Chemistry**, Butterworth-Heinemann Ltd., Oxford, 1995.

CNEN, Ministério da Ciência e Tecnologia, Resolução N°. 102. Diário Oficial: Imprensa Universitária, n°. 88, seção 1, p. 7, 2011.

CNEN. **Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos**. Brasil, Rio de Janeiro 2003.

COSTA, G. H. G. *et al.* Reflexos do processamento de cana-de-açúcar bisada na qualidade do açúcar VHP. **Boletim do Centro de Pesquisa de Processamento de Alimentos**, v. 32, n. 2, 2014.

CREMA, L. C. **Clarificação por flotação com ar dissolvido (FAD) da calda de açúcar cristal para produção de açúcar refinado**. 2012.

CROUTHAMEL, Carl Eugene; ADAMS, Freddy; DAMS, Richard. **Applied gamma-ray spectrometry**. Elsevier, 2013.

CURRIE, Lloyd A. **Limits for qualitative detection and quantitative determination. Application to radiochemistry**. Analytical chemistry, v. 40, n. 3, p. 586-593, 1968.

DE RULG, WILLEM G.; VAN DER STRUIJS, Teunis DB. **Radioactive contamination of food sampled in the áreas of the USSR affected by the Chernobyl disaster**. Analyst, v. 117, n. 3, p. 545-548, 1992.

DE SOUZA CRUZ, F. F. Radioatividade e o acidente de Goiânia. **Caderno Brasileiro de Ensino de Física**, v. 4, n. 3, p. 164-169, 1987.

EISENBUD, M., & PASCHOA, A. S. **Environmental radioactivity. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment**, 280(2-3), 470-482, 1989.

EISENBUD, M.; GESELL, T. **Environmental Radioactivity: From Natural, Industrial, and Military Sources**. New York: Academic Press, p. 656, 1997.

EPSTEIN, J.; HARRIS, D. Properties of selected radioisotopes. A bibliography, part 1- Unclassified literature. 1968.

ERTEL, J.; ZIEGLER, H. Cs-134/137 contamination and root uptake of different forest trees before and after the Chernobyl accident. **Radiation and environmental biophysics**, v. 30, n. 2, p. 147-157, 1991.

EVELYN, Kenneth A. MEDICAL APPLICATIONS OF ARTIFICIAL RADIOACTIVE ISOTOPES. **Canadian Medical Association journal**, v. 56, n. 5, p. 547, 1947.

FIGUEIRA, Rubens CL; CUNHA, Ieda IL. The contamination of the oceans by anthropogenic radionuclides. **Quimica Nova**, v. 21, n. 1, p. 73-77, 1998.

FIRESTONE, R. B.; EKSTROM, L. P.; CHU, S. Y. F. WWW Table of radioactive isotopes. In: **APS Division of Nuclear Physics Meeting Abstracts**. 1999.

FRAWLEY, Natasha *et al.* The Brazilian sugar industry. **Agricultural Commodities**, v. 6, n. 2, p. 63, 2016.

FROEHLICH, Klaus (Ed.). **Environmental radionuclides: Tracers and timers of terrestrial processes**. Elsevier, 2009.

GALLE, P., & PAULIN, R. **Radiobiology, radio-pathology**, 2000.

GAVRILESCU, Maria; PAVEL, Lucian Vasile; CRETESCU, Igor. Characterization and remediation of soils contaminated with uranium. **Journal of hazardous materials**, v. 163, n. 2-3, p. 475-510, 2009.

GIANNAKOPOULOU, F. *et al.* Sorption behavior of cesium on various soils under different pH levels. **Journal of Hazardous Materials**, v. 149, n. 3, p. 553-556, 2007.

GLASSTONE, Samuel; DOLAN, Philip J. **The effects of nuclear weapons**. Department of Defense, Washington, DC (USA); Department of Energy, Washington, DC (USA), 1977.

HARB, S. *et al.* **Study of efficiency calibrations of HPGe detectors for radioactivity measurements of environmental samples**. 2008.

HONDA, Makio C. *et al.* **Dispersion of artificial caesium-134 and-137 in the western North Pacific one month after the Fukushima accident**. *Geochemical Journal*, v. 46, n. 1, p. e1-e9, 2012.

IAEA, International Atomic Energy Agency. ***X ray gamma-ray standards for detector calibration***. IAEA publication, technical report: TECDOC 619, INSS 1011-4289, International Atomic Energy Agency, Vienna, Austria, 157 p, 1991.

IAEA. **Guidelines for Radioelement Mapping Using Gamma Ray Spectrometry Data**. IAEA Publication, Technical Report: TECDOC 1363, ISSN 1011-4289, Viena, p. 179, 2003.

ICRP, International Commission Radiation Protection. **Reactions and Early and Late Effects of Radiation in Normal Tissues and Organs – Threshold Doses for Tissue Reactions**. **Radiation Protection Contexts**, v. 41, n. 1-2, p. 1-322 2012.

ICRP, **Radiation Dose to Patients from Radio pharmaceuticals**. ICRP Publication 103. Ann 2007.

INTERNATIONAL COMMISSION RADIATION PROTECTION (ICRP). **Protection Against  $^{222}\text{Rn}$  at Home and at Work**. ICRP Publication 65, *Annals of the ICRP* 23, 1993.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Protection of Public in Situations of Prolonged Radiation Exposure**. ICRP Publication, 82, Pergamon Press, Oxford, New York, 1999.

IPEN, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Publicação Nº. 385. **Análises Radiométricas Realizadas pelo Serviço de Monitoração Ambiental do IPEN de 1988 a 1991**, 1993.

ISMA. **World Per Capita Consumption of sugar**. Disponível em <[http://www.indiansugar.com/PDFS/World\\_per\\_Capita\\_Consumption\\_of\\_Sugar.pdf](http://www.indiansugar.com/PDFS/World_per_Capita_Consumption_of_Sugar.pdf)>. Acesso em 27 set. 2017.

JESUS, C. D. F. *et al.* **Validação da simulação dinâmica das etapas de evaporação e cristalização da produção de açúcar com dados obtidos em plantas industriais**. 2004. Tese de Doutorado, Universidade Federal de São Carlos, São Paulo, Brasil.

KARACAN, Filiz. The simple radiochemical determination of  $^{90}\text{Sr}$  in environmental solid samples by solvent extraction. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 288, n. 3, p. 685-691, 2011.

KELLER, Gert; MUTH, Hermann. Natural Radiation Exposure. In: **Radiation Exposure and Occupational Risks**. Springer, Berlin, Heidelberg, 1990. p. 1-24.

KENDALL, C. Isotope Tracers Project—Resources on Isotopes—Cesium. **National Research Program—US Geological Survey**. Retrieved, p. 01-25, 2010.

KNOLL, G. F. Radiation detection and measurement. **John Wiley&Sons, New York**, 1989.

KNOLL, Glenn F. **Radiation detection and measurement**. John Wiley & Sons, 2010.

KONING, A. *et al.* Joint Evaluated Fission and Fusion File, Incident-neutron data. 2006.

LAVI, N.; ALFASSI, Z. B. Development of Marinelli beaker standards containing thorium oxide and application for measurements of radioactive environmental samples. **Radiation measurements**, v. 39, n. 1, p. 15-19, 2005.

LOPES, C. H. **Tecnologia de produção de açúcar de cana**. 2017.

LOXTON, R.; POPE, P. (Ed.). **Instrumentation: A Reader: A Reader**. Springer Science & Business Media, 2012.

MACEDO, M. A.; MARJOTTA-MAISTRO, M. C. . **Potencial do Mercado Doméstico Para o Açúcar VHP**. **Revista de economia e sociologia rural**, v. 1, p. 978-85-98571-13, 2015.

MACHADO, S. S. **Tecnologia da fabricação do açúcar**. 2016.

MANDRO, Juliana Lorenz. **Processo de peroxidação de açúcar tipo VHP na produção de açúcar refinado: implicações químicas, tecnológicas e microbiológicas**. 2016. Tese de Doutorado. Universidade de São Paulo.

MAZZILLI, Barbara Paci; MÁDUAR, Marcelo Francis; DE CAMPOS, Marcia Pires. **Radioatividade no meio ambiente e avaliação de impacto radiológico ambiental**. IPEN (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares), Universidade de São Paulo, São Paulo, p. 92, 2011.

MELNIKOV, Petr; ZANONI, Lourdes Zélia. Clinical effects of cesium intake. **Biological trace element research**, v. 135, n. 1-3, p. 1-9, 2010.

MELQUIADES, Fábio Luiz; APPOLONI, Carlos Roberto. Radioatividade natural em amostras alimentares. **Caderno Brasileiro de Ensino de Física**, v. 21, n. 1, p. 120-126, 2004.

MURRAY, A. *et al.* Analysis for naturally occurring radionuclides at environmental concentrations by gamma spectrometry. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 115, n. 2, p. 263-288, 1987.

National Institutes of Health (NIH). OPEN Chemistry Database., **Sucrose**: <<https://pubchem.ncbi.nlm.nih.gov/compound/sucrose#section=Top>>. Acesso em 30 fev. 2018.

OKUNO, Emico. Efeitos biológicos das radiações ionizantes: acidente radiológico de Goiânia. **estudos avançados**, v. 27, n. 77, p. 185-200, 2013.

PERKINS, J.; GADD, G. M. Caesium toxicity, accumulation and intracellular localization in yeasts. **Mycological research**, v. 97, n. 6, p. 717-724, 1993.

PINSKY, Carl *et al.* Cesium in mammals: Acute toxicity, organ changes and tissue accumulation. **Journal of Environmental Science & Health Part A**, v. 16, n. 5, p. 549-567, 1981.

REGUIGUI, N. Gamma Ray Spectrometry, Practical Information. 2006.

RUNDO, J. VI. A Survey of the Metabolism of Caesium in Man. **The British journal of radiology**, v. 37, n. 434, p. 108-114, 1964.

S.E.A. GmbH, **Marinelli e suas dimensões**, 2017. Disponível em :<[http://www.marinellibecker.com/en/products/products\\_marinellibeaker.html](http://www.marinellibecker.com/en/products/products_marinellibeaker.html)>. Acesso em 05 jul. 2017.

SANTOS JÚNIOR, J. A. **Avaliação radiométrica do U-238, Ra-226, Th-232 e K-40 em uma área anômala do agreste de Pernambuco**. 2009. Tese de Doutorado, UFPE, Pernambuco, Brasil.

SANTOS JÚNIOR, J. A. *et al.* Determination of radionuclides in the environment using gamma-spectrometry. **Journal of radioanalytical and nuclear chemistry**, v. 269, n. 2, p. 451-455, 2006.

SANZHAROVA, N. I. *et al.* Changes in the forms of <sup>137</sup>Cs and its availability for plants as dependent on properties of fallout after the Chernobyl nuclear power plant accident. **Science of the Total Environment**, v. 154, n. 1, p. 9-22, 1994.

SELMAN, Joseph. **Basic physics of radiation therapy**. 1976

SIERVO, M. *et al.* Sugar consumption and global prevalence of obesity and hypertension: an ecological analysis. **Public health nutrition**, v. 17, n. 3, p. 587-596, 2014.

SOLECKI, J.; CHIBOWSKI, S. Determination of transfer factors for <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr isotopes in soil–plant system. **Journal of radioanalytical and nuclear chemistry**, v. 252, n. 1, p. 89-93, 2002.

Swiderski, L., Chandra, R., Curioni, A., Davatz, G., Friederich, H., Gendotti, A., ... & Murer, D. (2015). Scintillation response of Xe gas studied by gamma-ray absorption and Compton electrons. *Journal of Instrumentation*, 10(07), P07003.

TAYLOR, V. F.; EVANS, R. D.; CORNETT, R. J. Preliminary evaluation of <sup>135</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs as a forensic tool for identifying source of radioactive contamination. **Journal of environmental radioactivity**, v. 99, n. 1, p. 109-118, 2008.

TÉCNICAS, ASSOCIAÇÃO BRASILEIRAS DE NORMAS. NBR 7217: Agregados: determinação da composição granulométrica. **Rio de Janeiro**, 1987.

TORMAN, V. B. L.; COSTER, R.; RIBOLDI, J. Normality of variables: diagnosis methods and comparison of some nonparametric tests by simulation. **Rev HCPA**, v. 32, p. 227-34, 2012.

TURNER, James E. Atoms, radiation, and radiation protection. **Atoms, Radiation, and Radiation Protection, 2nd Edition**, by James E. Turner, pp. 576. ISBN 0-471-59581-0. **Wiley-VCH, April 1995.**, p. 576, 1995.

TURNER, James E. **Atoms, radiation, and radiation protection**. John Wiley & Sons, 2008.

TYKVA, Richard; BERG, Dieter (Ed.). **Man-made and natural radioactivity in environmental pollution and radiochronology**. Springer Science & Business Media, 2004.

TZORTZIS, Michalis *et al.* Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic geological rocks. **Radiation Measurements**, v. 37, n. 3, p. 221-229, 2003.

UNSCEAR. **Sources and effects of ionizing radiation: sources**. United Nations Publications, 2000.

UNSCEAR. **Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Fifty-sixth Session (10-18 July 2008)**. United Nations Publications, 2008.

VAN DER POEL, P. W. Sugar technology. Beet and cane sugar manufacture/PW van der Poel, H. Schiweck, T. Schwartz. **Berlin: Verlag Dr. Albert Vartens KG**, 1998.

VENTURINI, L.; SORDI, G. A. **Radioactivity in and committed effective dose from some Brazilian food stuffs**. Health physics, v. 76, n. 3, p. 311-313, 1999.

VINICHUK, M. *et al.* Accumulation of potassium, rubidium and caesium (<sup>133</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs) in various fractions of soil and fungi in a Swedish forest. **Science of the total environment**, v. 408, n. 12, p. 2543-2548, 2010.

WHICKER, F. Ward; SCHULTZ, Vincent. **Radioecology: nuclear energy and the environment**. Boca Raton, FL: CRC press, 1982.

WORLD NUCLEAR ASSOCIATION. **Nuclear Radiation and Health Effects**. United Kingdom, London, 2016.

XAVIER, Allan Moreira *et al.* Marcos da história da radioatividade e tendências atuais. **Química Nova**, 2007.

ZAPATA, F. (Ed.). **Handbook for the assessment of soil erosion and sedimentation using environmental radionuclides**. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers, 2002.