

N^o 65
TESE DE
DOUTORADO

***AVALIAÇÃO RADIOMÉTRICA DO U-238, Ra-226,
Th-232 E K-40 EM UMA ÁREA ANÔMALA DO
AGRESTE DE PERNAMBUCO***

AUTOR: JOSÉ ARAÚJO DOS SANTOS JÚNIOR

**RECIFE - PERNAMBUCO - BRASIL
SETEMBRO - 2009**

UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR
PROGRAMA DE PÓS - GRADUAÇÃO EM TECNOLOGIAS
ENERGÉTICAS E NUCLEARES (PROTEN)

JOSÉ ARAÚJO DOS SANTOS JÚNIOR

**AVALIAÇÃO RADIOMÉTRICA DO U-238, Ra-226, Th-232 E K-40
EM UMA ÁREA ANÔMALA DO AGRESTE DE PERNAMBUCO**

RECIFE - PERNAMBUCO - BRASIL
SETEMBRO - 2009

**AVALIAÇÃO RADIOMÉTRICA DO U-238, Ra-226, Th-232 E K-40
EM UMA ÁREA ANÔMALA DO AGRESTE DE PERNAMBUCO**

JOSÉ ARAÚJO DOS SANTOS JÚNIOR

**AVALIAÇÃO RADIOMÉTRICA DO U-238, Ra-226, Th-232 E K-40
EM UMA ÁREA ANÔMALA DO AGRESTE DE PERNAMBUCO**

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação
em Tecnologias Energéticas e Nucleares do
Departamento de Energia Nuclear da
Universidade Federal de Pernambuco, para
obtenção do título de Doutor em Ciências. Área
de Concentração: Dosimetria e Instrumentação.

Orientador: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral (DEN-UFPE)

Co-orientador: Prof. Dr. Cleomacio Miguel da Silva

RECIFE - PERNAMBUCO - BRASIL
SETEMBRO - 2009

S237a

Santos Júnior, José Araújo dos.

Avaliação radiométrica do U-238, Ra-226, Th-232 e K-40 em uma área anômala do agreste de Pernambuco / José Araújo dos Santos Júnior. - Recife: O Autor, 2009.

139 folhas., il., gráfs., tabs.

Tese (Doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, 2009.

Inclui referências, apêndices e anexos.

1. Dosimetria Ambiental. 2. Radio Equivalente. 3. Espectrometria Gama. 4. Radioatividade Natural. 5. Radionuclídeos Primordiais. I. Título.

624 CDD (22. ed.)

BCTG/2009-194

AVALIAÇÃO RADIOMÉTRICA DO U-238, Ra-226, Th-232 E K-40 EM UMA ÁREA ANÔMALA DO AGRESTE DE PERNAMBUCO

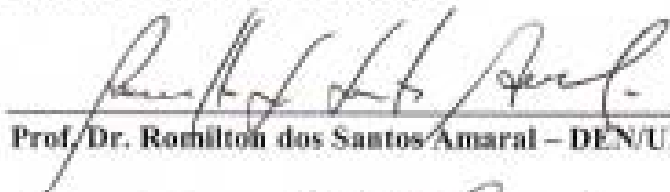
José Araújo dos Santos Júnior

APROVADO EM: 14.09.2009

ORIENTADOR: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral

CO-ORIENTADOR: Prof. Dr. Cleomácio Miguel da Silva

COMISSÃO EXAMINADORA:



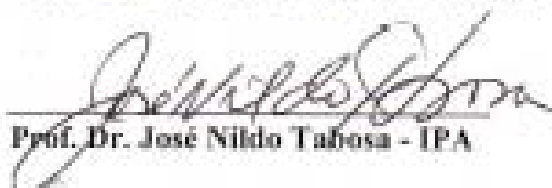
Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral – DEN/UFPE



Prof. Dr. Everardo Valadares de Sá Barreto Sampaio – DEN/UFPE



Prof. Dr. Frederico Antonio Genezini – IPEN/CNEN



Prof. Dr. José Nildo Tábora – IPA



Profa. Dra. Vivianne Lúcia Bormann de Souza – CRCN-NE/CNEN

Visto e permitida a impressão



Coordenador do PROTEN/DEN/UFPE

A minha família,
Dedico.

AGRADECIMENTOS

Em primeiro lugar agradeço a Deus, pela saúde, sabedoria e conhecimento, requisitos importantes para minha formação e mais uma conquista.

Aos meus orientadores, Professores: Dr. Romilton dos Santos Amaral, Dr. Cleomacio Miguel da Silva pela orientação e amizade, e de uma forma especial, ao Prof. PhD. Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso (in memoriam) pelas inúmeras contribuições para esta pesquisa, aos conhecimentos adquiridos ao longo dos anos e a amizade.

Ao comitê de acompanhamento, e aos professores e pesquisadores que participaram dos seminários de tese do exame de qualificação e da defesa: Dr. Frederico Antonio Genezini (Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN, Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN - SP), Dr. Valdir do Amaral Vaz Manso (Departamento de Geologia - UFPE), Dr. Cleomacio Miguel da Silva, Dr. Everardo Valadares de Sá Barretto Sampaio, Dr. João Antônio Filho, Dr. Rômulo Simões Cezar Menezes (Departamento de Energia Nuclear - UFPE), Dr. José Nildo Tabosa (Empresa Pernambucana de Pesquisa Agropecuária - IPA), Dra. Viviane Lúcia Bormann de Souza (Centro Regional de Ciências Nucleares - CRCN-PE) pela colaboração.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pela bolsa de estudos e a taxa de bancada concedidas.

A Fundação de Apoio ao Desenvolvimento da Universidade Federal de Pernambuco (FADE) pelo suporte financeiro.

A Pró-Reitoria para Assuntos de Pesquisa e Pós-Graduação (PROPESQ) - UFPE pela aprovação do Projeto Emergencial para aquisição do nitrogênio líquido utilizado na pesquisa.

Ao Prof. Dr. André Maciel Netto, coordenador do Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares - PROTEN - DEN - UFPE, pelo apoio a esta pesquisa.

Ao Prof. Dr. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira pelo conhecimento adquirido ao longo dos anos, pelo apoio e pela amizade.

A Dra. Eliane Valentim Honorato do Centro Regional de Ciências Nucleares (CRCN), pela disponibilidade da infra-estrutura do Laboratório de Dosimetria Ambiental.

Ao Grupo de Radioecologia (RAE) e ao Departamento de Energia Nuclear pela infra-estrutura disponibilizada.

Ao Grupo de Estudos em Radioecologia e Radioproteção (GERAR) - DEN - UFPE, pela disponibilidade do Laboratório de Biodosimetria e Modelagem Aplicada (LAMBDA) para as análises microscópicas e capturas de imagens.

Ao Laboratório de Metrologia das Radiações Ionizantes - DEN - UFPE, por ter disponibilizado as fontes para calibração dos sistemas de medidas.

Ao Laboratório de Tecnologia Mineral do Departamento de Geologia da UFPE, pela disponibilidade dos equipamentos para tratamento das amostras.

A Profa. Dra. Jacira Guiró Marino do Departamento de Medicina Social da UFPE pelas contribuições estatísticas.

A todos os outros professores do DEN-UFPE pela colaboração para minha formação, e aos colegas pela amizade e o incentivo.

A percepção do desconhecido é a mais fascinante das experiências. O homem que não tem os olhos abertos para o mistério passará pela vida sem ver nada.

Albert Einstein

RESUMO

Estudos radiométricos e radioecológicos vêm sendo desenvolvidos mundialmente, em busca do mapeamento de áreas com elevados níveis de radioatividade, um pré-requisito essencial na investigação da exposição à radioatividade ambiental. Nesse trabalho foram estudadas amostras de rochas e solo derivado de uma área efetivamente anômala em urânio no município de Pedra, Pernambuco, utilizando análises não destrutivas, com aplicação da espectrometria gama de alta resolução com detector HPGe, para os radionuclídeos das séries do ^{238}U e do ^{232}Th , assim como o ^{40}K , calculando-se suas atividades específicas. Os valores de ^{238}U variaram de menor que 2,8 a 79.092 Bq.kg⁻¹; os de ^{226}Ra de menor que 0,6 a 144.438 Bq.kg⁻¹; os de ^{232}Th de 6,9 a 1.903 Bq.kg⁻¹ e os de ^{40}K de menores que 4,7 a 2.274 Bq.kg⁻¹. Uma estimativa dos teores, das taxas de doses gamas naturais e do rádio equivalente foram realizadas com base nos valores das atividades específicas. Os teores médios em solo foram 3,3 mg.kg⁻¹ de ^{238}U ; 0,7 ng.kg⁻¹ de ^{226}Ra ; 39,3 mg.kg⁻¹ de ^{232}Th e 3,4 mg.kg⁻¹ de ^{40}K ; em rochas graníticas, os valores médios foram 2,0 mg.kg⁻¹ de ^{238}U ; 0,6 ng.kg⁻¹ de ^{226}Ra ; 40,2 mg.kg⁻¹ de ^{232}Th e de 3,1 mg.kg⁻¹ de ^{40}K ; enquanto nas rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, as médias para ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th foram 3.132 mg.kg⁻¹; 1.886 ng.kg⁻¹ e 119 mg.kg⁻¹, respectivamente. A taxa de dose equivalente efetiva devida a radiação gama natural a 1 m da superfície e o rádio equivalente estimados, apresentaram, respectivamente, valores médios de 204 μSv.a⁻¹ e 393 Bq.kg⁻¹ para solo; 195 μSv.a⁻¹ e 328 Bq.kg⁻¹ para as rochas graníticas e de 20.993 μSv.a⁻¹ e 70.124 Bq.kg⁻¹ para as rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas. Além disso, foi estimada a disponibilidade do urânio natural no solo da área com base na razão Th/U. No solo, o urânio apresentou baixa mobilidade (Th/U igual a 4,6) para pelo menos 80% dos pontos amostrados. Os resultados permitiram monitorar a exposição gama externa à qual os indivíduos que residem próximos a essas áreas estão expostos. Estima-se uma taxa de dose máxima superior a 43 vezes o limite recomendado para indivíduos do público, que é de 1 mSv.a⁻¹. Recomenda-se que essas áreas sejam pouco utilizadas ou evitadas, de forma minimizar exposições desnecessárias.

Palavras-chave: Dosimetria ambiental, rádio equivalente, espectrometria gama, radioatividade natural, radionuclídeos primordiais.

ABSTRACT

Radiometric and radioecologic studies are being developed worldwide, aiming to map highly radioactive areas, an essential pre requisite in the investigation of the environmental radioactivity exposition. Rock and soil samples derived from an effectively anomalous uranium area in the district of Pedra, Pernambuco, were studied, using non-destructive analysis, with the application of the high resolution gamma spectrometric with an HPGe detector, for the radionuclide from the ^{238}U and ^{232}Th series, as well as the ^{40}K , regarding their specific activities. The values of the ^{238}U ranged from minor than 2.8 to 79,092 Bq.kg^{-1} ; the ones of the ^{226}Ra from minor than 0,6 to 144,438 Bq.kg^{-1} ; the ones of the ^{232}Th from 6.9 to 1,903 Bq.kg^{-1} and the ones of the ^{40}K from minor than 4.7 to 2,274 Bq.kg^{-1} . A content estimation from the natural gamma equivalent dose rates and equivalent radium were made based on the values of the specific activities. The average content in soil was 3.3 mg.kg^{-1} of ^{238}U ; 0.7 ng.kg^{-1} of ^{226}Ra ; 39.3 mg.kg^{-1} of ^{232}Th and 3.4 mg.kg^{-1} of ^{40}K ; in granite rocks the average rates were 2.0 mg.kg^{-1} of ^{238}U ; 0.6 ng.kg^{-1} of ^{226}Ra ; 40.2 mg.kg^{-1} of ^{232}Th and of 3.1 mg.kg^{-1} of ^{40}K ; whereas in calcium-silicatic amphibolitic rocks the average for ^{238}U , ^{226}Ra and ^{232}Th were 3,132 mg.kg^{-1} ; 1,886 ng.kg^{-1} and 119 mg.kg^{-1} , respectively. The effective equivalent dose rate due to natural gamma radiation to 1m of the surface and the equivalent radium estimation, showed respectively, average amounts of 204 $\mu\text{Sv.y}^{-1}$ and 393 Bq.kg^{-1} for soil; 195 $\mu\text{Sv.y}^{-1}$ and 328 Bq.kg^{-1} for granite rocks, and of 20,993 $\mu\text{Sv.y}^{-1}$ and 70,124 Bq.kg^{-1} for the calcium-silicatic amphibolitic rocks. Besides, the availability of natural uranium in the soil of the area based in the ratio Th/U was estimated. In the soil, uranium showed low mobility (Th/U equal to 4.6) for at least 80% of the sampled points. The results have allowed the monitoring of the external gamma exposition to which the individuals residing nearby these areas are exposed. A dose rate maximum superior to 43 times the recommended limit for public individuals is estimated, which is of 1 mSv.y^{-1} . The little utilization or even the avoidance of these areas is recommended in order to minimize unnecessary exposition.

Key words: Environmental Dosimetry, equivalent radium, gamma spectrometry, natural radioactivity, primordial radionuclides.

LISTA DE FIGURAS

	Página
Figura 1. Diagramas parciais das séries do ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th com energias gamas	33
Figura 2. Localização das áreas anômalas e distribuição da coleta em Pedra/PE	38
Figura 3. Sistema de medidas	42
Figura 4. Reta de calibração do sistema de medidas utilizando gamas do ^{152}Eu	53
Figura 5. Curva de calibração em função do FWHM e da energia	54
Figura 6. Resolução para os gamas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	55
Figura 7. Estabilidade do sistema de medidas nas transições de 63, 295 e 338 keV	57
Figura 8. Estabilidade do sistema de medidas nas transições de 352, 609 e 911 keV	58
Figura 9. Estabilidade do sistema de medidas nas transições de 969 e 1.461 keV	59
Figura 10. Curva de eficiência 1 para contagens a 0 cm do detector e 8.196 canais	60
Figura 11. Curva de eficiência 2 para contagens a 16 cm do detector e 8.196 canais	61
Figura 12. Curva de eficiência 3 para contagens a 0 cm do detector e 4.096 canais	62
Figura 13. Curva de eficiência 4 para contagens a 0 cm do detector e 8.196 canais	62
Figura 14. Espectro de uma amostra de solo com baixa radiação e influência da radiação de fundo para o cálculo do limite de detecção	65
Figura 15. Fotos microscópicas da rocha cálcio-silicática anfibolítica da fazenda F2	68
Figura 16. Espectro gama da rocha cálcio-silicática anfibolítica da fazenda F2.....	69
Figura 17. Espectro gama da amostra de rocha granítica da fazenda F1.....	70
Figura 18. Espectro gama da amostra de solo da fazenda F2.....	71
Figura 19. Espectro gama da amostra de solo da fazenda F1.....	71
Figura 20. Média das atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em rochas e no solo da área de estudo.....	79
Figura 21. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em solo	80
Figura 22. Distribuição de frequências para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K no solo estudado.....	81
Figura 23. Diagrama de caixas dos radionuclídeos nas amostras de solo estudadas.....	82
Figura 24. Isoradas para ^{238}U	84
Figura 25. Isoradas para ^{226}Ra	85
Figura 26. Isoradas para ^{232}Th	86

Figura 27. Isoradas para ^{40}K no solo estudado	87
Figura 28. Correlação das atividades dos radionuclídeos em solo	88
Figura 29. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K no solo da área estudada.....	89
Figura 30. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em rochas graníticasda área de estudo	90
Figura 31. Distribuição de frequências para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K na rochas graníticas estudadas.....	91
Figura 32. Diagrama de caixas dos radionuclídeos nas amostras de rocha estudadas	93
Figura 33. Correlação das atividades dos radionuclídeos em rochas graníticasestudadas ..	94
Figura 34. Atividades dos radionuclídeos para as amostras graníticas analisadas.....	95
Figura 35. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas estudadas	96
Figura 36. Distribuição de frequências do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th em rochas anômalasda área estudada	97
Figura 37. Diagrama de caixas dos radionuclídeos nas amostras de rochas anômalas da área de estudo.....	97
Figura 38. Correlação das atividades dos radionuclídeos nos afloramentos de rochas anômalas das fazendas F1 e F2	98
Figura 39. Atividades dos radionuclídeos para as amostras de rochas anômalasda área de estudo.....	100
Figura 40. Teores do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra nas amostras de solo da área de estudo	105
Figura 41. Teores do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra nos afloramentos graníticos estudados	105
Figura 42. Teores do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas das fazendas F1 e F2.....	106
Figura 43. Medidas de pH nas amostras de solo e rochas da área estudada.....	107
Figura 44. Variação da atividade do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em função do pH nas amostras de solo e rochas estudadas.....	108
Figura 45. Diagrama da razão Th/U no solo estudado	109
Figura 46. Contribuição das séries do ^{238}U e do ^{232}Th acompanhadas do ^{40}K para a taxa de dose equivalente efetiva.....	115
Figura 47. Cálculo do Ra_{eq} para as amostras de rochas e solo	116

LISTA DE TABELAS

	Página
Tabela 1. Séries naturais de decaimentos radioativos.	22
Tabela 2. Principais minerais de urânio.	24
Tabela 3. Concentração média e atividade específica de urânio natural em rochas, solos e na crosta continental.	25
Tabela 4. Limites e médias de concentrações de ^{232}Th em rochas e solos.	27
Tabela 5. Limites e médias de concentrações de potássio total em rochas e solos e atividade do ^{40}K	29
Tabela 6. Principais energias gamas para determinação de radionuclídeos naturais.	32
Tabela 7. Resolução em energia para as transições gamas utilizadas na qualificação dos radionuclídeos de interesse.	55
Tabela 8. Parâmetros utilizados para o ajuste das curvas de eficiências.	63
Tabela 9. Limites de detecção para as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	64
Tabela 10. Atividades específicas dos padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu	66
Tabela 11. Identificação, localização, medidas de pH e das atividades específicas para as amostras de solo e rochas.	75
Tabela 12. Resultados da estatística descritiva e teste de normalidade para as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	78
Tabela 13. Resultados estatísticos da correlação dos radionuclídeos no solo da área de estudo.	89
Tabela 14. Resultados estatísticos da correlação dos radionuclídeos em rochas graníticas da área de estudo.	92
Tabela 15. Estatística para correlação dos radionuclídeos nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas das fazendas F1 e F2.	99
Tabela 16. Teores dos radionuclídeos nas amostras de solo e rochas.	102
Tabela 17. Resultados da estatística descritiva e teste de normalidade para os teores do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K na área de estudo.	104
Tabela 18. Estimativa da taxa de dose ambiental pelo cálculo das taxas de doses absorvida e equivalente e o rádio equivalente.	111

Tabela 19. Resultados da estatística descritiva e do teste de normalidade para os as taxas de doses do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras.....	114
Tabela 20. Estudo comparativo das atividades específicas, taxas de doses absorvidas, equivalentes efetivas e do rádio equivalente para solo.....	119
Tabela 21. Atividades e contribuição do ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K em solo para a taxa de dose absorvida.....	120
Tabela 22. Concentrações de Th, U e K no solo e as médias mundiais.	120
Tabela 23. Atividades e contribuição do ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K nas rochas para a taxa de dose absorvida.....	122
Tabela 24. Doses de radiação gama natural estimadas pela UNSCEAR.	122
Tabela 25. Meias-vidas e atividades específicas dos radionuclídeos estudados	139
Tabela 26. Caracterização dos padrões utilizados.	139

LISTA DE EQUAÇÕES

	Página
Equação 1: Cálculo para a contagem gama do fotopico de 63 keV.....	34
Equação 2: Cálculo para a contagem gama do fotopico de 63,9 keV.....	34
Equação 3: Cálculo para a contagem gama do fotopico de 93 keV.....	34
Equação 4: Cálculo para a contagem gama do fotopico de 92,8 keV.....	34
Equação 5: Cálculo para a contagem gama do fotopico de 93,93 keV.....	34
Equação 6: Cálculo do fator de ponderação da razão $^{238}\text{U}/^{225}\text{U}$	35
Equação 7: Cálculo para a contagem gama do fotopico de 186 keV.....	35
Equação 8: Cálculo do tempo de contagem.....	42
Equação 9: Cálculo da figura de mérito utilizada para o tempo de contagem.....	43
Equação 10: Correção da atividade específica dos padrões.....	44
Equação 11: Cálculo da eficiência de contagem.....	44
Equação 12: Cálculo da área líquida dos fotopicos.....	45
Equação 13: Resolução em energia.....	46
Equação 14: FWHM.....	46
Equação 15: Limite de detecção.....	47
Equação 16: Cálculo da atividade específica experimental.....	48
Equação 17: Atividade experimental ponderada.....	48
Equação 18: Determinação dos teores dos radionuclídeos.....	49
Equação 19: Estimativa dos teores pelas atividades específicas teóricas e empíricas.....	49
Equação 20: Taxa de dose gama absorvida natural.....	50
Equação 21: Taxa de dose gama equivalente efetiva natural.....	50
Equação 22: Rádio equivalente.....	51
Equação 23: Calibração em energia.....	53
Equação 24: Eficiência experimental ajustada.....	63
Equação 25: Coeficiente de atenuação de massa.....	63

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

A	Concentração de atividade
ADC	Analogic Digital Conversor
BeGe	Broad Energy Germanium
BG	Background
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
CPRM	Companhia de Pesquisas e Recursos Minerais
DNPM	Departamento Nacional de Pesquisas Minerais
F1 e F2	Fazendas
FWHM	Full Width at Half Maximum
HPGe	High purity Germanium Detector
IAEA	International Atomic Energy Agency
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IRD	Instituto de Radioproteção e Dosimetria
LD	Limite de Detecção
MCA	Multichannel Analyzer
NUCLEBRAS	Empresas Nucleares Brasileiras
Ra_{eq}	Rádio Equivalente
RCSA	Rocha cálcio-silicática anfibolítica
RG	Rocha Granítica
RN	Radionuclídeo
ROI	Região de interesse
S	Solo
TR	Terrar raras
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation

SUMÁRIO

	Página
1 INTRODUÇÃO.....	18
2 REVISÃO DE LITERATURA	21
2.1 Radioatividade natural.....	21
2.2 Urânio	23
2.3 Rádio.....	26
2.4 Tório	27
2.5 Potássio	28
2.6 Equilíbrio Radioativo	29
2.7 Espectrometria gama	30
2.8 Anomalias radioativas na Região Nordeste do Brasil	35
3 MATERIAIS E MÉTODOS.....	37
3.1 Área de estudo, amostragem e preparação das amostras.....	37
3.2 Procedimentos para as análises por espectrometria gama.....	40
3.2.1 Sistema de medidas	40
3.2.2 Tempo de contagem	42
3.2.3 Curvas de eficiência	43
3.2.4 Eficiências de contagens dos padrões.....	44
3.2.5 Determinação da área líquida	45
3.2.6 Resolução em energia.....	46
3.2.7 Estabilidade do sistema de medidas	47
3.2.8 Limites de detecção	47
3.2.9 Cálculo das atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	48
3.2.10 Cálculo dos teores.....	49
3.3 Estimativa da dose de radiação gama natural.....	50
3.3.1 Cálculo da taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural.....	50
3.3.2 Cálculo da taxa de dose equivalente efetiva devido a radiação gama natural.....	50
3.3.3 Rádio Equivalente	51
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO	52

4.1 Padronização da metodologia.....	52
4.1.1 Curvas de calibração.....	52
4.1.1.1 Energia.....	52
4.1.1.2 Resolução	54
4.1.2 Estabilidade do sistema de medidas	56
4.1.3 Curvas de eficiências	59
4.1.4 Limites de detecção (LD)	64
4.1.5 Validação da metodologia	66
4.2 Análise microscópica da rocha uranífera.....	67
4.3 Análise dos espectros	68
4.4 Atividades específicas	72
4.4.1 Amostras de solo	80
4.4.2 Amostras de rochas graníticas	90
4.4.3 Amostras de rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas	95
4.5 Teores dos radionuclídeos	101
4.6 Estudos geoquímicos do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	106
4.7 Avaliação da dose de radiação gama natural.....	109
4.8 Rádio Equivalente	116
4.9 Estudo comparativo	117
5 CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES	123
REFERÊNCIAS	125
APÊNDICE A – Resultados dos testes estatísticos anova.	133
APÊNDICE B – Trabalhos publicados	137
APÊNDICE C – Trabalhos submetidos	138
ANEXO A – Meias-vidas e atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	139
ANEXO B – Caracterização dos padrões utilizados.	139

1 INTRODUÇÃO

A radioatividade ambiental é derivada dos radionuclídeos naturais, e sua maior contribuição para a exposição externa é proveniente dos elementos radioativos primordiais pertencentes às séries do ^{238}U e do ^{232}Th , acompanhados do ^{40}K (KANNAN et al., 2002). Todos estes radionuclídeos, quando presentes no meio ambiente, contribuem significativamente para aumentar a dose de radiação, tendo como consequência uma maior exposição dos seres vivos as radiações ionizantes (SANTOS; MARQUES, 2003; SUJO et al., 2004). Aproximadamente 87% da dose de radiação recebida pela humanidade são devidas às fontes de radiação natural e o restante devido à radiação antropogênica (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation - UNSCEAR, 1993 apud KANNAN et al. 2002).

A concentração média de urânio na crosta terrestre é da ordem de 2 mg.kg^{-1} (AIETA et al., 1987). Diversos estudos mostram que as concentrações médias de U_3O_8 em regiões fosfáticas da Tunísia, Argélia, Jordânia, Israel, Estados Unidos, Marrocos e Brasil (Nordeste), são, respectivamente, da ordem de 47, 132, 149, 140, 200, 160 e 300 ppm (ALMEIDA, 1974). Entretanto, pesquisas sobre a concentração de U_3O_8 nas rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas existentes nos municípios de Pedra e Venturosa, localizadas na região do agreste semi-árido de Pernambuco, na chamada “Bacia Leiteira” do estado, revelaram valor máximo de $22.000 \text{ mg.kg}^{-1}$ de urânio (MAGALHÃES, 1977). Como resultados destas pesquisas, as Empresas Nucleares Brasileiras (NUCLEBRAS) em convênio com a Companhia de Pesquisas e Recursos Minerais (CPRM), avaliaram que a extração de minérios de urânio não era economicamente viável na área que inclui estes municípios (SCHEID, 1975; MAGALHÃES, 1977). Além do urânio, esses estudos mostraram também que a concentração média de tório (ThO_2) nas rochas dos referidos municípios foi de aproximadamente 100 mg.kg^{-1} (COSTA et al., 1976). Um estudo mais detalhado das concentrações desses radionuclídeos é muito importante do ponto de vista de proteção radiológica, pois, a presença de minérios de urânio e de tório no meio ambiente das fazendas produtoras de leite dos municípios de Pedra e Venturosa pode resultar em concentrações elevadas de seus produtos de decaimento na cadeia alimentar, podendo produzir danos a saúde da população, principalmente, pela ingestão de leite e derivados.

Neste contexto, o presente trabalho teve como objetivo realizar estudos radiométricos sobre ocorrências de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K numa área com anomalias uraníferas, principalmente U_3O_8 , de forma a identificar áreas com levados níveis de radioatividade natural. A partir desses resultados também foi possível estimar a exposição dos seres vivos que residem próximos a essas áreas, pelos cálculos de parâmetros de radioproteção e radioecológicos, predizendo a exposição externa aos emissores gamas e consequentemente, garantindo o princípio de radioproteção aplicado a dosimetria ambiental.

O reconhecimento de áreas sob influências de processos radioativos (naturais e/ou antropogênicos) é de grande importância do ponto de vista do controle radioecológico (PIRES, 1995). Estudos geoquímicos na principal ocorrência anômala de urânio, em duas fazendas produtoras de leite localizadas entre os dois municípios, encontraram concentrações de atividades para o ^{238}U e o ^{226}Ra , de 22 a 268 Bq.kg^{-1} , com média de 92 Bq.kg^{-1} em amostras de solo, e de 14 a 367 Bq.kg^{-1} , com média de 57 Bq.kg^{-1} em amostras de rochas (SANTOS JÚNIOR, 2005; SANTOS JÚNIOR et al., 2006). Entretanto, para as amostras de rochas, as atividades específicas variaram de aproximadamente 16.567 a 95.980 Bq.kg^{-1} para o ^{238}U e 14.018 a 83.567 Bq.kg^{-1} para o ^{226}Ra .

A rocha anômala em urânio foi classificada como uma rocha cálcio-silicática anfibolítica (SANTOS JÚNIOR et al., 2005a). Esse tipo de rocha, normalmente, não apresenta urânio associado, e a única exceção foi a desta pesquisa. Na continuidade dos estudos (SANTOS JÚNIOR et al., 2005b; SANTOS JÚNIOR et al., 2009a), foram identificadas concentrações elevadas de ^{40}K e de ^{228}Ra (^{232}Th) no solo, com atividades específicas variando de 541 a 3.572 Bq.kg^{-1} , com média de 1.827 Bq.kg^{-1} para o ^{40}K e de 73 a 429 Bq.kg^{-1} , com média de 223 Bq.kg^{-1} para o ^{228}Ra , obtendo-se uma razão média de $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ de aproximadamente 5, ou seja, uma concentração de ^{228}Ra (^{232}Th) cinco vezes superior a média obtida para o ^{226}Ra (^{238}U) em solo. As evidências deste último estudo mostraram que não existe uma correlação das atividades dos isótopos do rádio em solo. Nas rochas anômalas em urânio os valores do ^{228}Ra estão abaixo do limite de detecção (LD).

Devido às elevadas concentrações de radionuclídeos naturais das séries do urânio e do tório no solo, existe uma grande possibilidade de transferência desses elementos para os

vegetais cultivados na região estudada. Como mostra a literatura, vegetais cultivados em locais com elevados níveis de radioatividade ambiental absorvem eficientemente radionuclídeos naturais (International Atomic Energy Agency - IAEA, 1994). Nas fazendas da região do agreste semi-árido de Pernambuco, como na maioria dos municípios da “Bacia Leiteira” do estado, a dieta dos bovinos leiteiros é constituída aproximadamente por, 67% de pastagens nativas e 33% de pastagens cultivadas (Serviço Brasileiro de Apoio às Micro e Pequenas Empresas - SEBRAE-PE, 2002). Esses são parâmetros importantes, pois o leite é considerado uma das fontes de ingestão de radionuclídeos pelo homem, principalmente se for produzido com os animais consumindo forragem fresca (JOHNSON et al., 1988). A transferência de radionuclídeos naturais na cadeia solo-planta-leite-homem pode ser considerada, como de extrema importância na contaminação da população do agreste semi-árido de Pernambuco.

2 REVISÃO DE LITERATURA

2.1 Radioatividade natural

A radioatividade natural é originada de fontes cósmicas e de elementos radioativos presentes na crosta terrestre. Aproximadamente 340 nuclídeos podem ser formados na natureza, e destes 70 são radioativos, formados geralmente entre os elementos pesados. Todos os elementos com números atômicos superiores a 80 possuem isótopos radioativos, e todos os isótopos maiores que 83 são radioativos (EISENBUD; GESELL, 1997). Isto não significa que não existam radionuclídeos com números atômicos inferiores a 80.

A radioatividade terrestre inclui três grandes categorias de radionuclídeos: (a) os primordiais com meias-vidas longas que estão presentes na superfície da Terra desde sua formação, (b) os secundários que são derivados do decaimento dos primordiais, e (c) os cosmogênicos que são constantemente produzidos por bombardeamentos de nuclídeos estáveis por raios cósmicos na atmosfera. Dos radionuclídeos primordiais existentes, o ^{235}U , ^{238}U , ^{87}Rb e ^{40}K estão entre aqueles que apresentam meias-vidas comparadas com a idade da Terra (EISENBUD; GESELL, 1997).

A radiação gama emitida em ocorrências de radionuclídeos naturais, como ^{40}K e os radionuclídeos das séries radioativas naturais do ^{235}U , ^{238}U , ^{232}Th e seus produtos de decaimento (ver Tabela 1), representam a principal fonte de exposição gama externa para o homem. A exposição aos radionuclídeos naturais está diretamente associada à radioatividade do ambiente, e esta é devida principalmente à radiação gama, cujos níveis dependem primariamente das condições geológicas de cada área do planeta e da concentração de urânio, tório e potássio da rocha que originou o solo (TZORTZIS; TSERTOS, 2004; ANJOS et al., 2005). As rochas ígneas de composição granítica são enriquecidas em U e Th, com concentrações médias de 5 mg.kg^{-1} e de 15 mg.kg^{-1} , respectivamente. As rochas de composição basáltica ou ultramáficas possuem concentração de urânio menor que 1 mg.kg^{-1} . Geralmente, os altos níveis de radiação estão associados às rochas ígneas, e os baixos níveis, às rochas sedimentares. Alguns xistos e rochas fosfáticas podem conter altos níveis de radionuclídeos naturais (UNSCEAR, 2000 apud TZORTZIS; TSERTOS, 2004).

Tabela 1. Séries naturais de decaimentos radioativos.

URÂNIO – 238			URÂNIO – 235			TÓRIO – 232		
ISÓTOPO	EMIÇÃO	T _{1/2}	ISÓTOPO	EMIÇÃO	T _{1/2}	ISÓTOPO	EMIÇÃO	T _{1/2}
²³⁸ U	α	4,5x10 ⁹ a	²³⁵ U	α	7,0x10 ⁸ a	²³² Th	α	1,4x10 ¹⁰ a
²³⁴ Th	β ⁻	24,1 d	²³¹ Th	β ⁻	25,6 h	²²⁸ Ra	β ⁻	5,7 a
²³⁴ Pa	β ⁻	1,2 m	²³¹ Pa	α	3,3x10 ⁴ a	²²⁸ Ac	β ⁻	6,13 h
²³⁴ U	α	2,5x10 ⁵ a	²²⁷ Ac	β ⁻	22 a	²²⁸ Th	α	1,9 a
²³⁰ Th	α	8,0x10 ⁴ a	²²⁷ Th	α	18,7 d	²²⁴ Ra	α	3,64 d
²²⁶ Ra	α	1.600 a	²²³ Ra	α	11,4 d	²²⁰ Rn	α	55,6 s
²²² Rn	α	3,8 d	²¹⁹ Rn	α	3,9 s	²¹⁶ Po	α	0,15 s
²¹⁸ Po	α	3,05 m	²¹⁵ Po	α	1,8x10 ⁻³ s	²¹² Pb	β ⁻	10,6 h
²¹⁴ Pb	α	26,8 m	²¹¹ Pb	β ⁻	36,1 m	²¹² Bi	α (33,7%)	60,6 m
²¹⁴ Bi	β ⁻	19,8 m	²¹¹ Bi	α	2,15 m		β ⁻ (66,3%)	
²¹⁴ Po	β ⁻	1,62x10 ⁻⁴ s	²⁰⁷ Tl	β ⁻	4,8 m	²⁰⁸ Tl	β ⁻	3,1 m
²¹⁰ Pb	α	22 a	²⁰⁷ Pb	ESTÁVEL		²¹² Po	α	3,0x10 ⁻⁷ s
²¹⁰ Bi	β ⁻	5,0 d				²⁰⁸ Pb	ESTÁVEL	
²¹⁰ Po	α	138,4 d						
²⁰⁶ Pb	ESTÁVEL							

a = ano; d = dia; h = hora; m = minuto; s = segundo; T_{1/2} = meia-vida física. (EGGEBERT-SEELMANN et al., 1974).

O potássio é normalmente encontrado em rochas que contêm feldspato potássico, como microlina e ortoclásio, ou micas, como muscovita e biotita. Rochas que não possuem estes minerais em sua composição apresentam uma baixa concentração de potássio (ANJOS et al., 2005).

Quanto à mobilidade, o urânio tende a ser altamente móvel próximo à rocha de origem, enquanto que o tório quase não forma compostos solúveis. Assim, o urânio pode ser facilmente oxidado em solução aquosa e ser removido das rochas graníticas e pegmatíticas por lixiviação e redepositado em sedimentos distanciados da rocha de origem. O tório, que é bem menos solúvel que o urânio e o potássio, não apresenta fácil mobilidade, a não ser por meios mecânicos, como vento ou pelo processo de erosão (ANJOS et al., 2005). Estas características geoquímicas de rochas graníticas, associadas com os efeitos do tempo e do metamorfismo, produzem alterações expressivas nos diagramas de concentrações dos radionuclídeos naturais e conseqüentemente, nas concentrações de tório, urânio e potássio em diferentes amostras de granito (ANJOS et al., 2005).

No Brasil, algumas áreas apresentam altos níveis de radioatividade natural. Entre elas, pode-se destacar a região de minas de urânio e tório do Planalto de Poços de Caldas em Minas Gerais e as praias com areias monazíticas, em Guapari, no Espírito Santo, onde os níveis de radiação natural atingem valores dez vezes superiores aos normais

(EISENBUD; GESELL, 1997). Rochas fosfáticas localizadas na faixa costeira do Nordeste do Brasil (AMARAL, 1987), estendendo-se desde a costa pernambucana (sul de Olinda) até o extremo norte da Paraíba, com uma extensão de 150 km e largura média de 4 km, têm concentrações de urânio variando de 127 a 254 mg.kg⁻¹ (150 a 300 mg.kg⁻¹ de U₃O₈) e de tório variando de 1 a 5 mg.kg⁻¹ (0,0001 a 0,0005%) (Comissão Nacional de Energia Nuclear - CNEN/ Departamento Nacional de Pesquisas Minerais - DNPM, 1985). Segundo os autores, os estudos comparativos mostraram que a fosforita do Nordeste apresenta uma das mais altas concentrações de U₃O₈ entre as regiões fosfáticas do mundo. Estudos recentes realizados na região agreste semi-árido do estado de Pernambuco determinaram em amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, concentrações de urânio da ordem de 9.100 mg.kg⁻¹ com 0,42% (em volume) de U₁₋₃O₂₋₈, que é 3.370 vezes superior ao clarke global do urânio que é de 2,8 mg.kg⁻¹ (SANTOS JÚNIOR, 2005).

2.2 Urânio

O urânio é encontrado na natureza principalmente na forma de óxidos, sendo os mais importantes a uraninita (UO₂) e a pechblenda (U₃O₈), este último uma forma de oxidação parcial da uraninita (ARGENTIÈRE, 1954). O urânio natural é composto por três isótopos, com abundâncias diferenciadas. O ²³⁴U, com aproximadamente 0,0058% da massa total de urânio, o ²³⁵U com 0,71% e a maior contribuição, cerca de 99,28% de ²³⁸U (LITAOR, 1995; EISENBUD; GESELL, 1997; KARANGELOS et al., 2004). O ²³⁸U apresenta meia-vida física de 4,47x10⁹ anos e meia vida-biológica para os ossos de 20 e 5.000 dias, considerando dois compartimentos, e para os rins e outros tecidos de 6 e 1.500 dias. Sua atividade específica é de 330 nCi.g⁻¹ (12 kBq.g⁻¹), emissor alfa com energias de 4,20 MeV (79%) e 4,15 MeV (21%) (FIRESTONE et al., 1996).

Os minerais de urânio são classificados em primários e secundários (KIMBLE; SINCLAIR, 1950). Os primários são aqueles que não sofreram alterações desde sua formação, enquanto que os secundários são formados a partir dos primários devido ao intemperismo. Entre primários e secundários existem mais de cem minerais de urânio (WEDEPOHL, 1978; SANSONE et al., 2001). Na Tabela 2 pode ser observado os

principais minerais que contêm urânio e são considerados economicamente viáveis. Nessa tabela, observa-se também que, em quase todos os minerais de urânio este pode ser parcialmente substituído por tório e por terras raras (TR).

Tabela 2. Principais minerais de urânio.

<i>MINERAL</i>	<i>COMPOSIÇÃO</i>	<i>U (%)</i>
Uraninita	$\text{UO}_2 - (\text{U}, \text{Th}, \text{TR})\text{O}_2$	88
Pechblenda	$\text{U}_3\text{O}_8 - (\text{U}, \text{Th}, \text{TR})_3\text{O}_8$	60 – 70
Coffinita	$(\text{U}, \text{Th}, \text{Ca}, \text{TR})\text{SiO}_4$	74
Brannerita	$(\text{U}, \text{Th}, \text{Ca}, \text{TR})(\text{Ti}, \text{Fe}^{2+})_2\text{O}_6$	35,8
Carnotita	$(\text{K}_2, \text{Ca})[\text{UO}_2.\text{VO}_4]_2.3\text{H}_2\text{O}$	44 - 52,8
Autunita	$\text{Ca}[\text{UO}_2.\text{PO}_4]_2.10\text{H}_2\text{O}$	54,5
Torbernita	$\text{Cu}[\text{UO}_2.\text{PO}_4]_2.10\text{H}_2\text{O}$	52,8
Thucholita	Humatos de urânio	1,8

TR: Terras raras. (PETRASCHECK; POHL, 1982).

As concentrações de urânio no planeta podem variar com base na formação geológica de cada área. As rochas graníticas apresentam geralmente maiores teores de urânio, principalmente os pegmatitos graníticos, nos quais o urânio ocorre em grande número de minerais (CARDOSO, 1978). Este fenômeno se deve ao ciclo geoquímico do urânio, que começa e termina com uma rocha ácida, granítica (PETRASHECK, 1961; PETRASCHECK; POHL, 1982). Os pegmatitos estão geralmente associados ao corpo granítico, contendo minerais de urânio (monazita, xenotimo, zircão, allanita, gadolinita, samarskita, uraninita, etc., e minerais secundários) (RANKAMA; SAHAMA, 1950; CARDOSO, 1978). Partindo das rochas primárias, o urânio passa a ocorrer nas rochas delas derivadas, que são as sedimentares e as metamórficas. Entre as principais rochas sedimentares uraníferas continentais, estão conglomerados com uraninita, monazita, etc., arenitos com impregnações de carnotita, por exemplo, para onde o urânio foi transportado por água subterrânea, rochas detríticas "placers" (paleoplacers) com uraninita, e areias de praia com monazita e xenotimo, resultantes principalmente da desagregação dos pegmatitos. Das rochas e substâncias de origem marinha, as fosforitas, onde o cálcio foi parcialmente substituído por urânio, e os sapropéis, com urânio adsorvido pela matéria

orgânica e pela argila, são as mais importantes (RANKAMA; SAHAMA, 1950; CARDOSO, 1978).

Em rochas metamórficas resultantes da transformação de rochas magmáticas e sedimentares ricas em urânio, as concentrações de urânio podem ser elevadas. As cálcio-silicáticas, geralmente, não apresentam concentrações elevadas de urânio. Entretanto, trabalhos realizados em amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, coletadas da região do agreste semi-árido de Pernambuco, revelaram concentrações muito elevadas de urânio (SANTOS JÚNIOR, 2005; SANTOS JÚNIOR et al., 2006).

O teor médio de urânio na crosta continental (clarke global) é muito baixo, aproximadamente $2,8 \text{ mg.kg}^{-1}$ (EISENBUD; GESELL, 1997), podendo sua concentração variar de 0,5 a 5 mg.kg^{-1} (HICKOX, 2001). A atividade média de ^{238}U em solo corresponde a aproximadamente 25 Bq.kg^{-1} (DIMOVA et al., 2003). Na Tabela 3 observa-se as concentrações médias de urânio em diferentes tipos de rochas e suas respectivas atividades específicas.

Tabela 3. Concentração média e atividade específica de urânio natural em rochas, solos e na crosta continental.

TIPO DE ROCHA	URÂNIO	
	mg.kg^{-1}	Bq.kg^{-1}
Ígneas ácidas	3,0	37
Ígneas intermediárias	1,5	18
Ígneas básicas	0,6	7,3
Ígneas ultrabásicas	0,03	0,37
Meteoritos	0,003	0,037
Rochas fosfáticas (Flórida)	120	1.500
Rochas fosfáticas (N. África)	20 - 30	240 - 370
Xistos betuminosos	50 - 80	610 - 980
Granito normal	4	49
Pedra calcária	1,3	16
Outras rochas sedimentares	1,2	15
Solo	1,8	22
Crosta continental	2,8	36

(EISENBUD; GESELL, 1997).

De acordo com a Tabela 3, algumas rochas ácidas (ígneas ácidas) contêm concentrações de urânio 100 vezes superiores às concentrações encontradas nas rochas ígneas ultrabásicas. Observa-se também que nas rochas fosfáticas da Flórida foram encontrados os maiores teores de urânio (120 mg.kg^{-1}). Os menores teores de urânio estão associados aos meteoritos.

2.3 Rádio

O rádio está presente em todas as séries naturais de decaimento radioativo. Encontra-se na natureza em baixas concentrações (em solos, uma média de $0,8 \text{ ng.kg}^{-1}$), exceto em regiões com alta radioatividade natural, como por exemplo, regiões vulcânicas e minas de urânio (ROSE et al., 1979; ARAFA, 2004). Suas maiores concentrações estão em minerais que contêm urânio e tório (GONSALVES, 1959). Na natureza existem quatro isótopos do rádio, porém, do ponto de vista geoquímico e radiométrico, as determinações do ^{226}Ra e ^{228}Ra são as mais importantes (AKYIL et al., 2002). Segundo o Comitê Científico das Nações Unidas Sobre os Efeitos da Radiação Atômica (UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), a atividade média de ^{226}Ra estimada na superfície do solo de áreas sem alterações radioativas é de $25,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (MALANCA et al., 1993).

Do ponto de vista biológico e radiológico, o ^{226}Ra é um dos radionuclídeos mais importantes da série do ^{238}U . Isto se deve à sua longa meia-vida física de 1.622 anos, ao seu decaimento alfa de 4,78 MeV (94,5%) e 4,61 MeV (5,5%) formando o ^{222}Rn que, por sua vez, tem uma meia-vida física de 3,8 dias, sua similaridade química com o cálcio, e um fóton gama de 186 keV com 3,5% de probabilidade de emissão (EISENBUD; GESELL, 1997). O rádio, quando incorporado no corpo humano, comporta-se química e fisiologicamente como o cálcio, e tende a se concentrar basicamente nos ossos e dentes (EISENBUD; GESELL, 1997).

O ^{226}Ra está presente em rochas e solos em quantidade variável. As rochas ígneas tendem a conter concentrações mais elevadas que arenitos e calcários. Em rochas, este

radionuclídeo encontra-se geralmente em equilíbrio radioativo com ^{238}U (EISENBUD; GESELL, 1997).

2.4 Tório

O tório apresenta seis isótopos radioativos naturais (^{227}Th , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{231}Th , ^{232}Th e ^{234}Th), resultantes dos decaimentos das três séries radioativas (^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th). A atividade específica média mundial do ^{232}Th no solo é de aproximadamente 40 Bq.kg^{-1} (PAPP et al., 1997), e a sua concentração média no solo é de 9 mg.kg^{-1} (SCHULZ, 1965). Em rochas, a concentração de ^{232}Th varia de 1,6 a 20 mg.kg^{-1} , com uma média crostal de $10,7 \text{ mg.kg}^{-1}$, atingindo concentrações cinco vezes superiores às do urânio. Na Tabela 4 observa-se as concentrações médias de ^{232}Th para rochas e solos.

Tabela 4. Limites e médias de concentrações de ^{232}Th em rochas e solos.

MATERIAL	TÓRIO-232	
	mg.kg^{-1}	Bq.kg^{-1}
^a Basalto	3 - 4	10 - 15
^a Máfica	1,6; 2,7 ^c	7; 10 ^c
^a Granito (média)	17	70
^b Xistos arenosos (média)	12	50
^b Carbonáticas (média)	2	8
^b Demais rochas	1,6 - 20	7 - 80
Crosta continental (média)	10,7	44
Solo (média)	9	37

^aRochas ígneas; ^bRochas sedimentares; ^cMédia e mediana, respectivamente. (EISENBUD; GESELL, 1997).

O tório é encontrado apenas no estado de oxidação +4, apresentando como principais minerais a torita e a torianita. Contudo, a monazita, embora seja um mineral de cério, contém concentrações elevadas de tório (até 33%), onde este encontra-se associado aos elementos das terras raras. Na grande maioria dos sistemas naturais, o tório encontra-se preferencialmente adsorvido à fase sólida. Porém se o fluido contiver elevadas concentrações de matéria orgânica dissolvida e/ou sulfato, é possível que parte do tório permaneça na fase aquosa (EISENBUD; GESELL, 1997).

O ^{232}Th , precursor de uma das principais séries de decaimento radioativo, apresenta meia-vida física de $1,41 \times 10^{10}$ anos. Este radionuclídeo é emissor alfa com energia de 4,01 MeV (77,8%) e 3,95 MeV (22,1%). Sua emissão gama apresenta uma energia de 63,8 keV (0,267%) (EISENBUD; GESELL, 1997). Os riscos biológicos deste elemento para saúde humana podem ser classificados em radiológicos e químicos. Os riscos radiológicos do ^{232}Th estão associados à radioatividade dos seus descendentes, principalmente o ^{228}Ra pertencente a esta série de decaimento radioativo. No corpo humano, os isótopos do tório tendem a concentrar-se no fígado, rins, baço e na medula óssea. Sua toxicidade química é relativamente baixa, embora tenha sido constatado em experiências de laboratório que injeção intravenosa de compostos deste elemento pode causar a morte (EISENBUD; GESELL, 1997).

2.5 Potássio

O potássio é um elemento essencial ao metabolismo humano. Distribui-se uniformemente no corpo e está presente em todas as células vivas, principalmente no tecido muscular (EISENBUD; GESELL, 1997). O potássio natural é composto por uma mistura de três isótopos: ^{39}K , ^{40}K e ^{41}K . Apenas o ^{40}K é radioativo e ocorre numa proporção de 0,0118% em relação à massa total de potássio (ERDTMANN; SOYKA, 1979; PEIXOTO et al., 1995; PIRES, 1995; EISENBUD; GESELL, 1997). O ^{40}K é um radionuclídeo primordial, emissor de partículas beta com energia de aproximadamente 1,3 MeV (89,3%), formando neste tipo de decaimento, o isóbar ^{40}Ca . O ^{40}K decai também pelo processo de captura eletrônica, emitindo um raio gama com energia de 1,461 MeV (10,7%) e formando outro isóbar, o ^{40}Ar (CARLOS, 2006). O ^{40}K apresenta meia-vida física de aproximadamente $1,28 \times 10^9$ anos, meia-vida biológica de 30 dias e atividade específica de 31 kBq.kg^{-1} (836 pCi.g^{-1}) (ERDTMANN; SOYKA, 1979; PEIXOTO et al., 1995; PIRES, 1995; EISENBUD; GESELL, 1997).

O ^{40}K é responsável por 98% da emissão de radiação gama dos radionuclídeos primordiais presentes na crosta terrestre (PIRES, 1995). A média mundial da concentração específica do ^{40}K é de 370 Bq.kg^{-1} , variando de 100 a 700 Bq.kg^{-1} (MCAULAY; MORAN,

1988). A média mundial de taxa de dose absorvida no ar a 1 m da superfície para o ^{40}K é de $15,54 \text{ nGy.h}^{-1}$ (SELVASEKARAPANDIAN et al., 2000).

Em rochas, o potássio total está contido em uma proporção que varia de 0,3 a 4,5%. Suas concentrações são baixas em basaltos e areias, considerando que rochas graníticas contém, em geral, concentrações elevadas desse elemento (EISENBUD; GESELL, 1997). O feldspato potássico apresenta um teor máximo de ^{40}K de 0,14%. Na Tabela 5 observa-se as concentrações de K para alguns tipos de rochas e solos e as atividades devidas ao ^{40}K .

Tabela 5. Limites e médias de concentrações de potássio total em rochas e solos e atividade do ^{40}K .

<i>MATERIAL</i>	<i>POTÁSSIO</i>	
	$\text{K}_{\text{Total}} (\%)$	$^{40}\text{K} (\text{Bq.kg}^{-1})$
^a Basalto	0,8	300
^a Máfica	0,3 - 1,1	70 - 400
^a Granito (média)	>4	>1.000
^b Xistos arenosos (média)	2,7	800
^b Carbonáticas (média)	0,3	70
^b Todas as rochas	0,3 - 4,5	70 - 1.500
Crosta continental (média)	2,8	850
Solo (média)	1,5	400

^aRochas ígneas; ^bRochas sedimentares. (EISENBUD; GESELL, 1997).

2.6 Equilíbrio Radioativo

O equilíbrio radioativo é um processo muito importante para quantificação radiométrica do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th . Esse equilíbrio pode ser atingido quando ocorre o decaimento radioativo de um radioelemento formando produto instável, de forma que a meia-vida do produto de decaimento (filho) seja muito menor que a do precursor da série, atingindo um ponto onde o descendente decairá tão rapidamente quanto é formado. A esta condição dá-se o nome de equilíbrio radioativo secular. A igualdade da atividade no equilíbrio não implica em igual concentração dos diferentes radionuclídeos, uma vez que

suas meias-vidas são consideradas no cálculo das concentrações elementares relativas (teores) dos membros de cada série (CARLOS, 2006).

Para que ocorra o desequilíbrio radioativo, basta que um ou mais produtos de decaimento sejam parcialmente ou completamente removidos ou adicionados ao sistema, podendo levar dias, semanas, meses ou até milhões de anos para reestabelecer o equilíbrio, a depender das meias-vidas dos radionuclídeos envolvidos.

A série do urânio apresenta mais facilidade para a ocorrência do desequilíbrio radioativo. Este desequilíbrio ocorre devido ao fracionamento deste elemento, que é caracterizado pelos processos químicos (co-precipitação, adsorção, absorção) e físico (recuo nuclear). O fracionamento do ^{226}Ra na série do ^{238}U deve-se ao escape do ^{222}Rn , que é um gás, e escapa com facilidade para atmosfera oriundo de solos e fissuras nas rochas. Em laboratório, o equilíbrio radioativo secular é estabelecido para 10 meias-vidas do ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,8$ dias), ou seja, aproximadamente 40 dias.

2.7 Espectrometria gama

Diversos métodos analíticos, entre eles, espectrometria alfa, cintilação líquida e espectrometria de massa, são tradicionalmente utilizados para a determinação de baixos níveis de radionuclídeos naturais ($< 10^3 \text{ pg.g}^{-1}$), porém com custos adicionais e processos químicos trabalhosos na preparação das amostras (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003). Como alternativa, é utilizada a espectrometria gama que é uma técnica radioanalítica bastante difundida e utilizada para qualificação e quantificação de radionuclídeos, principalmente em amostras ambientais, nas quais geralmente a radioatividade é baixa (MALANCA et al., 1993; RÓDENAS et al., 2003; SUJO et al., 2004). Atualmente, utiliza-se com maior frequência detectores de germânio hiperpuros (HPGe - High purity Germanium), devido às suas vantagens operacionais. Uma das principais vantagens dessa técnica é a quantidade de informações obtidas em uma única análise. Além disso, é um método rápido, multielementar e não destrutivo, embora menos sensível que os métodos radioquímicos tradicionais. O método pode ser considerado absoluto e relativo, porém, para aplicação do método absoluto, é necessária a construção de uma curva de eficiência

(ϵ), pois em espectrometria gama a determinação exata da eficiência de contagem é o problema chave para medidas de radionuclídeos. Isto principalmente, com relação à escolha da fonte padrão adequada (BOLIVAR et al., 1996), que deve levar em consideração alguns parâmetros, tais como, densidade semelhante às amostras de atividades desconhecidas, minimizando assim, a influência do efeito da auto-absorção.

Este problema foi resolvido pela maioria dos laboratórios que trabalham com espectrometria gama, utilizando-se a própria matriz na análise para preparação do padrão, ou seja, diluição do padrão diretamente na matriz das amostras a serem analisadas (SANTOS JÚNIOR, 2005). Um outro parâmetro importante em análises por espectrometria gama é o tempo de aquisição dos espectros, que deve ser determinado e padronizado com base no volume de cada amostra analisada e no nível de radiação destas.

Alguns autores utilizaram várias transições gama para determinar as atividades gama do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K (ver Tabela 6). Outros autores (CHOUAK et al., 1978; LEE C.; LEE K., 1980; PAIC' et al., 1982; KIN; BURNETT, 1983; AMARAL, 1987; PAPACHRISTODOULOU et al., 2003; KARANGELOS et al., 2004), utilizaram os fotopicos de 63 e 93 keV do ^{234}Th para determinar a atividade do ^{238}U , pois o tempo para reestabelecer o equilíbrio ^{238}U - ^{234}Th é relativamente curto.

Para baixas energias, geralmente abaixo de 100 keV, ocorrem interferências da radiação de fundo, auto-absorção gama e efeitos secundários (AMARAL, 1987). Para evitar estas interferências, deve-se priorizar, sempre que possível, as análises dos fotopicos com energias mais altas. Para uso e medidas com detectores convencionais, a faixa de energia localizada entre 120 e 1.500 keV é a mais adequada para análise com espectrometria gama (BOLIVAR, et al., 1996).

Na Figura 1 constam diagramas parciais das séries de decaimento radioativo do ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003), com algumas energias gama e suas probabilidades de emissão, geralmente utilizadas para determinação destes radionuclídeos e de ^{226}Ra . Os diagramas propostos facilitam a observação da complexidade destas energias, principalmente as transições gama menores que 100 keV, sendo possível caracterizar os dubletos. A dificuldade em determinar o ^{238}U diretamente pelo seu fotopico gama de 49,6 keV (0,064%), leva ao uso de alternativas de análise. Os autores fizeram uso das transições de 63,3; 92,4 e 92,8 keV do ^{234}Th para determinar as atividades do ^{238}U no

equilíbrio secular (Figura 1), muito embora esta faixa de energia apresente suas limitações devido às interferências que ocorrem nesta região.

Tabela 6. Principais energias gamas para determinação de radionuclídeos naturais.

RADIONUCLÍDEO	EMISSOR	E_γ (keV)	$\gamma\%$
^{235}U	^{235}U	143,76	10,96
	^{235}U	163,33	5,08
	^{235}U	185,72	57,20
^{238}U	^{234}Th	63,29	4,84
	^{234}Th	93,00	5,58 ¹
	^{235}U	185,72	57,20
^{226}Ra	^{226}Ra	186,10	3,50
	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1.001,03	0,84
	^{226}Ra	186,10	3,50
	^{214}Pb	241,98	7,50
	^{214}Pb	258,79	0,55
	^{214}Pb	295,21	18,50
	^{214}Pb	351,92	35,80
^{232}Th	^{214}Bi	609,31	44,80
	^{214}Bi	1.120,29	14,80
	^{212}Pb	238,63	43,30
	^{228}Ac	338,33	11,30
	^{208}Tl	583,19	85,20
	^{228}Ac	911,21	26,60
	^{228}Ac	968,97	16,20
^{40}K	^{208}Tl	2.614,53	99,00
	^{40}K	1.460,86	10,67

E_γ = Energia gama; $\gamma\%$ = abundância gama percentual; ¹ ΣE_γ , $\gamma\%$ de 92,38 keV (2,58%) e 92,80 keV (3,00%) do ^{234}Th (FIRESTONE et al, 1996).

As energias nas regiões de 63,0 e 93,0 keV, acompanhadas do decaimento do ^{234}Th , têm sido normalmente mais utilizadas para determinação do ^{238}U . O pico de 63,0 keV é formado pelas emissões gama do ^{234}Th , ^{232}Th e ^{231}Th , sendo que a contribuição do último é negligenciada (exceto se a amostra for enriquecida em ^{235}U).

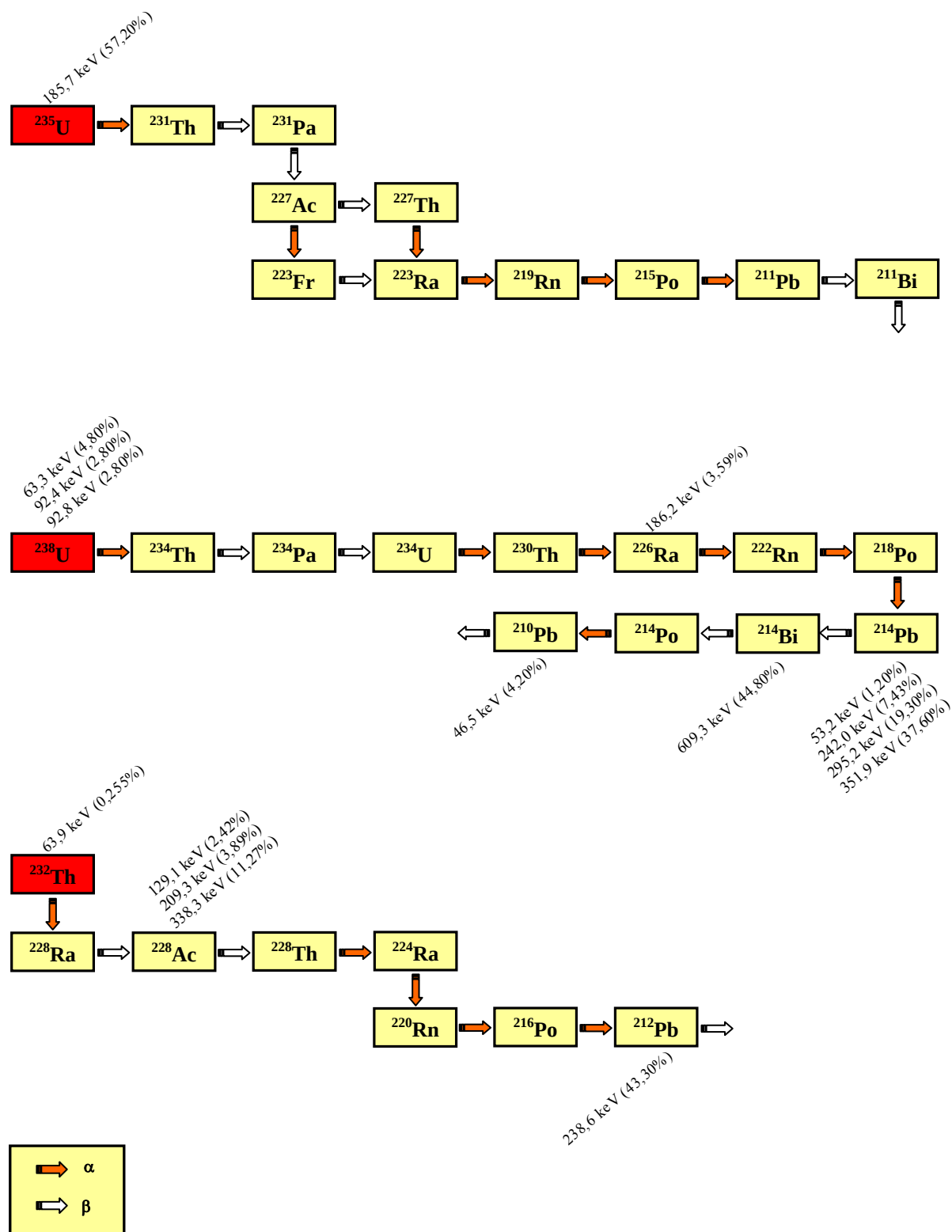


Figura 1. Diagramas parciais das séries do ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th com energias gamas (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003).

Portanto, quando o detector não apresentar resolução suficiente, a contagem gama do fotopico de 63,0 keV é obtida pela Equação 1 (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003), onde $C(^A\text{X}, E_\gamma)$ é a taxa de contagem para as energias gama (E_γ) emitidas pelo radionuclídeo ^AX .

$$C(63) = C(^{234}\text{Th } 63,3) + C(^{232}\text{Th } 63,9) \quad (1)$$

A taxa de contagem do ^{232}Th não deve ser negligenciada em solos ricos em tório natural, sendo calculada pela Equação 2, onde $I(^A\text{X}, E_\gamma)$ e $\varepsilon(E_\gamma)$ são a probabilidade de emissão gama e a eficiência de detecção para E_γ keV (energia γ).

$$C(^{232}\text{Th } 63,9) = \frac{\varepsilon(63,9) \times I(^{232}\text{Th } 63,9)}{\varepsilon(338,32) \times I(^{228}\text{Ac } 338,32)} \times C(^{228}\text{Ac } 338,32) \quad (2)$$

O pico de 93 keV é formado por dois raios- γ do ^{234}Th (92,38 e 92,80 keV) e um do ^{227}Th (93,93 keV), conforme apresentado pela Equação 3:

$$C(93) = C(^{234}\text{Th } 92,38) + C(^{234}\text{Th } 92,8) + C(^{227}\text{Th } 93,93) \quad (3)$$

A contribuição de 92,38 keV pode ser isolada por substituição, conforme as Equações 4 e 5:

$$C(^{234}\text{Th } 92,8) = \frac{\varepsilon(92,8) \times I(^{234}\text{Th } 92,8)}{\varepsilon(92,38) \times I(^{234}\text{Th } 92,38)} \times C(^{234}\text{Th } 92,38) \quad (4)$$

$$C(^{227}\text{Th } 93,93) = f^{-1} \frac{\varepsilon(93,93) \times I(^{227}\text{Th } 93,93)}{\varepsilon(92,38) \times I(^{234}\text{Th } 92,38)} \times C(^{234}\text{Th } 92,38) \quad (5)$$

o valor de f é calculado pela Equação 6:

$$f = \frac{A(^{238}\text{U})}{A(^{235}\text{U})} = \frac{m(^{238}\text{U}) \times \lambda(^{238}\text{U}) \times M(^{235}\text{U})}{m(^{235}\text{U}) \times M(^{238}\text{U}) \times \lambda(^{235}\text{U})} \quad (6)$$

onde $m(^A\text{X})$, $\lambda(^A\text{X})$ e $M(^A\text{X})$, é a massa utilizada, a constante de decaimento radioativo e a massa atômica do nuclídeo ^AX , respectivamente.

Uma alternativa para avaliação da atividade do ^{238}U é o uso da emissão gama do $^{234\text{m}}\text{Pa}$ na energia de 1.001 keV. Embora estes raios- γ não interfiram com outras emissões e sejam praticamente independentes da auto-absorção, apresentam baixa probabilidade de emissão (0,835%), sendo inadequados para análises de amostras de solo com atividades de urânio menores que 100 Bq.kg^{-1} (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003). Entretanto, deve-se levar em consideração a quantidade da amostra e o tempo de análise para se tomar a decisão final.

Para análise do ^{226}Ra o pico de 186 keV não é indicado devido à formação do fotopico dubleto entre o ^{235}U (Energia gama, E_γ de 185,7 keV com 57% de probabilidade de emissão, $\gamma(\%)$) e o ^{226}Ra ($E_\gamma = 186,21 \text{ keV}$; $\gamma(\%) = 3,59\%$), conforme apresentado pela Equação 7:

$$C(186) = C(^{235}\text{U } 185,7) + C(^{226}\text{Ra } 186,21) \quad (7)$$

E_γ é a energia gama emitida pelo radionuclídeo e $\gamma(\%)$ a probabilidade de emissão ou abundância gama da energia específica.

Uma alternativa para análise do ^{226}Ra é fazer uso dos fotopicos gamas intensos do ^{214}Pb (295,2 keV e 351,9 keV) e do ^{214}Bi (609,3 keV) no equilíbrio secular, conforme observado na Figura 1.

2.8 Anomalias radioativas na Região Nordeste do Brasil

Os estudos radiométricos da região Nordeste do Brasil tiveram início por volta de 1975, durante a execução do projeto Garanhuns. A NUCLEBRAS, juntamente com a

CPRM, realizaram uma prospecção radiogeológica numa área de 35.000 km², nos estados de Pernambuco, Alagoas e Sergipe. O projeto Garanhuns identificou 263 anomalias radioativas, mas, após estudos de verificação, apenas uma delas apresentou teores significativos de U₃O₈ (FILHO; ANDRADE, 1988). Um pouco mais tarde, em 1977, a NUCLEBRAS viabilizou um novo projeto denominado de Projeto Venturosa - Avaliação de áreas. Os resultados deste projeto indicaram a necessidade de uma sondagem geológica, que resultou no Projeto Venturosa - Sondagem e Perfilagem, realizado em 1978 (FILHO, ANDRADE, 1988).

Durante o projeto Garanhuns, foram detectadas anomalias radioativas significativas em fazendas produtoras de leite localizadas entre os municípios de Pedra e Venturosa, nas proximidades do Rio Ipanema. Neste local foram encontrados blocos rolados de rocha máfica, apresentando valores máximos de U₃O₈ de 22.000 mg.kg⁻¹ e 100 mg.kg⁻¹ de ThO₂ (COSTA et al., 1976). A mineralização de urânio se localiza em blocos rolados de anfíbolito, encontrados próximos ao contato do granito pórfiro com os migmatitos, que são duas unidades aflorantes regionais (COSTA et al., 1976). O mineral de urânio se faz presente macroscopicamente (afloramento), com material de coloração verde-amarelada, que preenche fraturas existentes nos blocos das rochas (COSTA et al., 1977). Em 1986, o escritório regional da NUCLEBRAS, em Fortaleza, iniciou os estudos que proporcionou a realização da fotointerpretação de uma área de 100 km² no município de Venturosa, e em suas adjacências, visando a retomada dos trabalhos (MENDONÇA, 1987), o que resultou na delimitação de uma área de aproximadamente 20 km² que abriga as principais mineralizações primárias de urânio do município. Esta área foi o principal objeto de estudo desta Tese, pois, nela encontram-se localizadas as principais fazendas produtoras de leite do município de Pedra.

3 MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 Área de estudo, amostragem e preparação das amostras

A área de estudo está situada no município de Pedra, localizado na Mesorregião Agreste e na Microrregião Vale do Ipanema do Estado de Pernambuco, limitando-se a norte com Pesqueira e Arcoverde, a sul com Águas Belas, a leste com Venturosa, Paratama e Caetés, e a oeste com Buíque, em torno da latitude de 08°29.817' sul, da longitude de 36°56.450' oeste e da altitude de 593 m. A área municipal ocupa 848,8 km² e representa 0,86% do Estado, cujo acesso é feito pela BR-232 e PE-217, a 255,4 km da capital pernambucana. De acordo com o censo 2000 do Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística (IBGE), a população residente total era de 20.244 habitantes, sendo 10.267 (50,7%) na zona urbana e 9.977 (49,3%) na zona rural, resultando numa densidade demográfica de 23,9 hab/km² (PRODEEM; CPRM, 2005). O município situa-se nos domínios da bacia hidrográfica do Rio Ipanema, contando com a água dos açudes Arcoverde, Mossoró, além das Lagoas do Bicheiro, do Jacu, da Grande, do Algodão e do Anzol. A temperatura média anual da região é de 22,9°C e apresenta uma vegetação do tipo caatinga hipoxerófila. A agropecuária representa 65,3% das atividades econômicas do município, sendo a pecuária leiteira a principal fonte de receitas no município, com produção mensal estimada em 2.160.000 litros de leite.

Na Figura 2 pode ser observado a área de coleta, localizada nas coordenadas: 08°37.693'S e 36°55.220'W com uma extensão de aproximadamente 1,7 km². Esta área foi escolhida por apresentar anomalias de ²³⁸U em rochas. Além disso, as rochas anômalas em urânio estão localizadas em fazendas produtoras de leite e derivados (F1 e F2 no mapa da Figura 2). Nesta área também são desenvolvidas atividade de agricultura de subsistência, e de suporte à pecuária, como o cultivo de palma forrageira e de capim de corte e pisoteio para alimentação dos animais. Como foi visto anteriormente, os primeiros estudos de monitoração radiométrica foram realizados no período de 1974 a 1975 pela NUCLEBRAS. Entre os anos de 2003 a 2005, visando o controle da radioatividade de uma das áreas anômalas (F1), Santos Júnior (2005); Santos Júnior et al. (2006), realizaram estudos de monitoração de ²³⁸U e ²²⁶Ra em torno de uma das principais anomalias em rocha.

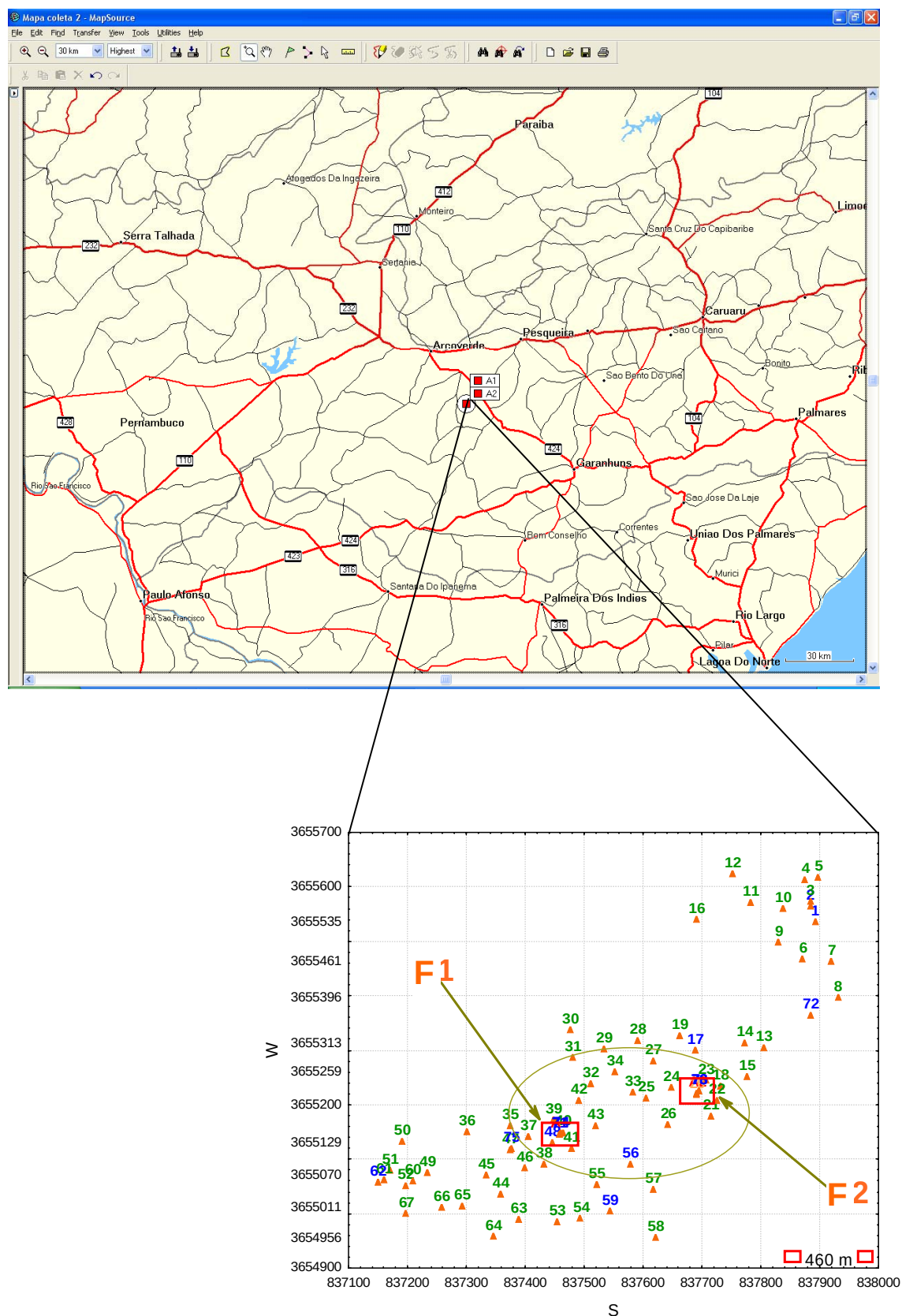


Figura 2. Localização das áreas anômalas e distribuição da coleta no município de Pedra/PE. Mapping software: MapSource® - Garmin®. F1, F2 - Áreas anômalas.

Nesses estudos, além de determinar as atividades destes radionuclídeos, foram realizadas análises difratométrica e modal da rocha, classificando-a como uma rocha cálcio-silicática anfibolítica. Com base nos resultados obtidos em rocha e solo, foi possível estabelecer critérios e traçar o perfil radiométrico do ^{238}U e ^{226}Ra nesta área.

A anomalia da fazenda F2, muito mais radioativa, a 460 m da fazenda F1, foi estudada nesse trabalho, de modo a construir um mapeamento radiométrico mais completo, verificando-se a sua influência na contaminação de áreas adjacentes. Convém observar que a necessidade de uma monitoração completa de toda a área é justificada uma vez que esta região é considerada uma das maiores produtoras de leite do Estado.

Inicialmente, as amostras foram coletadas em uma área (F1), superior a 50.000 m² (SANTOS JÚNIOR, 2005). Posteriormente, foi mapeada uma área mais abrangente, incluindo as fazendas F1 e F2, com aproximadamente 1,7 km² (Figura 2), de forma a observar a influência das áreas anômalas nos solos adjacentes, assim como tentar identificar outras fontes radioativas, por isso a amostragem realizada foi do tipo sistemática, priorizando a localização dos diferentes afloramentos de rochas e obedecendo a disposição do perfil topográfico da área.

Para as amostras de solo, padronizou-se uma área de coleta de 0,5 m², que foi previamente marcada e cuidadosamente limpa. Um total de 62 amostras de solo foram coletadas a uma profundidade média de 45 cm (30 a 50 cm), até atingir o horizonte C, o que classifica o solo como sendo do tipo litosolo, possibilitando coleta de amostras autoctonas.

As amostras de rochas foram coletadas nos diferentes afloramentos existentes ao longo da área de estudo, estes, compostos por rochas do tipo cálcio-silicáticas anfibolíticas e graníticas, esta última abundante em toda a área de estudo. Foram mapeados um total de 18 afloramentos, realizando-se 5 amostragens em cada, totalizando 90 amostras de rochas. Dessas rochas, 65 do tipo graníticas e 25 do tipo cálcio-silicáticas anfibolíticas, onde foram desprezadas as superfícies intemperizadas.

O mapa da Figura 2 também apresenta os pontos de coleta identificados por códigos, incluindo as duas fazendas com os afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas efetivamente anômalas em urânio (F1 e F2). Destaca-se neste mapa de coleta,

os códigos em azul como sendo os afloramentos de rochas e os códigos em verde, as amostras de solo.

No laboratório, as amostras de solo foram secas em estufa a 60°C, passadas em uma peneira com abertura de 1,0 mm, homogeneizadas, quarteadas, e acondicionadas em recipientes de polietileno com capacidade volumétrica de aproximadamente 210 cm³. As massas das amostras de solo foram padronizadas em 250 g.

As amostras de rochas foram reduzidas à mesma granulometria adotada para as amostras de solo, as diferentes amostragens por afloramento foram homogeneizadas, quarteadas e 300 g de cada acondicionada nos recipientes de polietileno padronizados. Foi priorizado a unificação das alturas das amostras nos recipientes, por esse motivo, foram utilizadas massas diferenciadas para o solo e para as rochas.

Após acondicionamento, as amostras foram hermeticamente fechadas por um período médio de 40 dias antes da medida no HPGe, para o estabelecimento do equilíbrio radioativo secular entre os radionuclídeos de meia-vidas curtas. Como se sabe, o equilíbrio radioativo é de fundamental importância, porque para a determinação das atividades indiretas de alguns radionuclídeos, como por exemplo, o ²²⁶Ra usa-se os fotopicos do ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi.

3.2 Procedimentos para as análises por espectrometria gama

3.2.1 Sistema de medidas

No Laboratório de Instrumentação Nuclear do Departamento de Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco, existem quatro sistemas de medidas gamas, entre esses, três fabricados pela Canberra® e um da marca Ortec®, os quais são utilizados para se determinar radionuclídeos naturais e antropogênicos no meio ambiente, utilizando-se da análise não destrutiva pela técnica de espectrometria gama.

Dois dos sistemas de medidas são compostos por detectores do tipo HPGe de alta resolução, e os outros dois, por cristais inorgânicos de iodeto de sódio ativado com tálio, NaI(Tl). Antes do início das análises, foi realizado um estudo comparativo entre os

detectores HPGe e NaI(Tl), com a finalidade de obter maior grau de precisão e exatidão nas análises do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em amostras ambientais (SANTOS JÚNIOR et al., 2009b). Este estudo permitiu observar que o HPGe é o detector que apresenta maior resolução em energia, portanto, indicado para o arranjo experimental padronizado na faixa de energia considerada para as análises desses radionuclídeos.

Em qualquer tipo de análise envolvendo a técnica de espectrometria gama, faz-se necessário, uma avaliação completa dos parâmetros relacionados ao sistema de medidas adotado no arranjo experimental. Para tanto, alguns parâmetros foram observados, para obter uma resposta do HPGe na qualificação e quantificação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K . Entre os parâmetros estudados estão: o tempo de contagem, as curvas de eficiências, as eficiências de contagens, os cálculos das áreas líquidas, a resolução em energia, a estabilidade do sistema de medidas para as diferentes energias utilizadas nos cálculos dos radionuclídeos de interesse e os limites de detecção. Estes parâmetros fornecem maior confiabilidade nos cálculos das atividades específicas, dos teores e da estimativa da dose de radiação gama natural realizados nesse estudo.

Para as medidas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , o arranjo experimental foi composto basicamente de um sistema de medidas com detector HPGe, de fabricação da Canberra® do tipo BeGe (Broad Energy Germanium), com 4,54 cm de diâmetro externo e volume ativo de 41,1 cm³ (Figura 3). O detector apresenta uma resolução de 1,77 keV (largura do pico a meia altura) para a energia de 1.332 keV do ^{60}Co , eficiência nominal de 27,7% e está acoplado a um pré-amplificador modelo 2002 CSL MCA (multichannel analyzer) com 8.192 canais e software Genie®-2000 Canberra®. A tensão de operação do pré-amplificador foi ajustada em 3 kV, conforme especificação do fabricante.

Para reduzir os efeitos da interferência do BG (background), o detector foi envolvido por uma blindagem de Pb com baixa radiação de fundo de aproximadamente 6,5 cm de espessura e uma superfície interna delgada constituída de uma liga de Cu e Zn, de forma a minimizar os efeitos secundários.

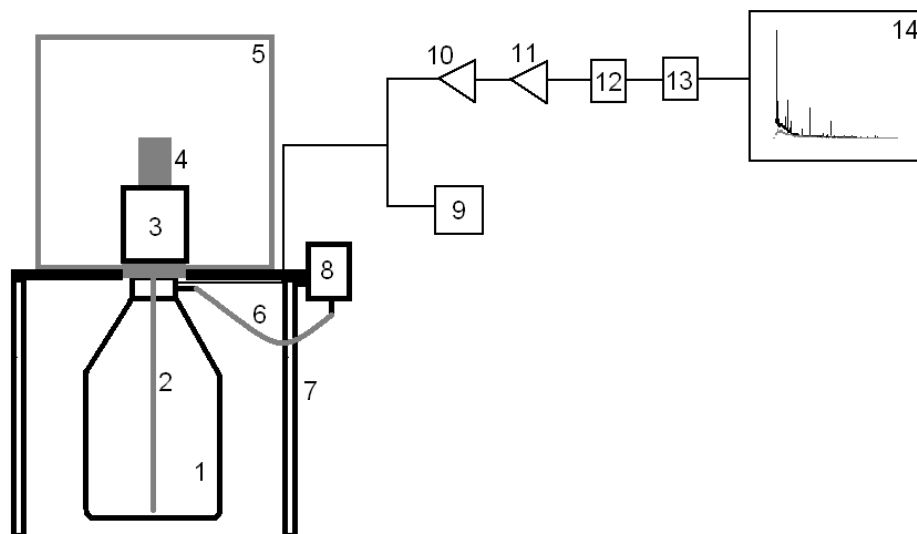


Figura 3. Sistema de medidas.

(1-Recipiente para N₂(l); 2-Haste de Cu para resfriamento do HPGe; 3-Detector HPGe; 4-Amostra em recipiente de polietileno; 5-Blindagem de Pb; 6-Mangueira para transferência de N₂(l); 7-Suporte da blindagem de Pb; 8-Alimentador de N₂(l); 9-Alta voltagem do pré-amplificador; 10-Pré-amplificador; 11-Amplificador; 12-ADC; 13-MCA; 14-Sistema computacional).

3.2.2 Tempo de contagem

Alguns testes foram realizados para estimar o melhor tempo de análise das amostras de solo e rochas, levando em consideração os diferentes fotopicos utilizados nas investigações do ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K. A Equação 8 (KNOLL, 1989) possibilitou estabelecer parâmetros do tempo mínimo de aquisição para esses fotopicos gama.

$$\frac{1}{T} = \xi^2 \frac{S^2}{(\sqrt{S+F_c} + \sqrt{F_c})^2} \quad (8)$$

Nesta equação, S corresponde à área total do espectro, F_c ao fundo Compton para cada fotopico, T o tempo de análise a ser definido e ξ à figura de mérito, que define a

qualidade da medida, calculada pela Equação 9, obtida pela razão entre o desvio padrão fracional da área bruta σ_S e o valor da área bruta S .

$$\xi = \frac{\sigma_S}{S} \quad (9)$$

Para estabelecer a padronização deste cálculo foram utilizadas as áreas de alguns fotopicos gamas utilizados na determinação dos radionuclídeos naturais de interesse. O tempo mínimo de contagem foi calculado levando-se em consideração o maior tempo para obtenção do espectro que apresentasse todos os fotopicos bem definidos. O tempo estimado pelas equações acima foi de aproximadamente 8 horas. Entretanto, para aumentar a confiança da estatística de contagem, padronizou-se um tempo de 12 horas (43.200 segundos). Este procedimento além de garantir uma boa estatística de contagem, efetivamente garantiu uma maior otimização, no sentido de não necessitar refazer as medidas. O mesmo tempo foi utilizado para as medidas de radiação de fundo (BG) realizadas durante os procedimentos analíticos.

3.2.3 Curvas de eficiência

Para a utilização da espectrometria gama, foi necessária a construção de curvas de eficiência do detector. Para construção dessas curvas foram utilizados padrões de ^{152}Eu e ^{241}Am , com atividades iniciais certificadas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) - Rio de Janeiro. Estes radionuclídeos apresentam amplos espectros de energias bem definidas, permitindo a obtenção de uma boa estatística de contagem, e consequentemente, boas curvas de correção em eficiência.

Para o ^{241}Am ($t_{1/2} = 433$ anos), foi utilizada a energia de 59,54 keV com 36,30% de probabilidade de emissão ($\gamma\%$). Na análise dos fotopicos do ^{152}Eu ($t_{1/2} = 12,7$ anos) foram utilizadas as energias gamas de 121,78 keV ($\gamma\% = 28,37\%$); 244,70 keV ($\gamma\% = 7,53\%$); 344,28 keV ($\gamma\% = 26,57\%$); 411,13 keV ($\gamma\% = 2,4\%$); 443,96 keV ($\gamma\% = 3,12\%$); 778,90 keV ($\gamma\% = 12,97\%$); 867,39 keV ($\gamma\% = 4,21\%$); 964,06 keV ($\gamma\% = 9,64\%$); 1.085,84 keV

($\gamma\% = 10,13\%$); 1.112,09 keV ($\gamma\% = 13,54\%$); 1.212,97 keV ($\gamma\% = 1,41\%$); 1.299,15 keV ($\gamma\% = 1,63\%$) e 1.408,02 keV ($\gamma\% = 20,85\%$). Essas energias foram selecionadas, conforme sugeridas no documento técnico nº 619 da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1991). A correção das atividades das fontes padrões foram calculadas pela Equação 10. A_{Eip} é a atividade a ser corrigida, com base na atividade inicial A_{Eip0} e na constante de decaimento radioativo, λ .

$$A_{Eip} = A_{Eip0} \times e^{-\lambda \times t} \quad (10)$$

O gráfico que representa as curvas de eficiências tem como variável dependente as eficiências de contagens, determinadas em função do radionuclídeo emissor gama e das energias gamas características. Essas curvas foram o ponto de partida na determinação das eficiências de contagens dos radionuclídeos em estudo, e foram utilizadas para os cálculos das atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

3.2.4 Eficiências de contagens dos padrões

Para os cálculos das eficiências de contagens foram estabelecidos alguns critérios para maior confiabilidade dos resultados: utilização de padrões certificados (devidamente adequados para as faixas de energias em estudo); diluição dos padrões diretamente em matrizes com densidades semelhantes às densidades das amostras analisadas; padronização das geometrias dos recipientes e de contagem (posicionamento no detector); uniformização dos volumes das amostras nos recipientes e do tempo de contagem. Com a utilização desses parâmetros, da curva de eficiência que foi construída experimentalmente, e pelo uso da Equação 11 (TZORTZIS et al., 2003), foram calculadas as eficiências de contagens para a determinação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e do ^{40}K .

$$\varepsilon_E = \frac{N_{Ei}}{A_{Eip} \times t \times \gamma_p \times V_p} \quad (11)$$

Assumindo que ε_E representa a eficiência de contagem, determinada com base na curva de eficiência; N_{Ei} a área líquida de cada fotopico, determinada experimentalmente em contagens; A_{Eip} a atividade específica gama do padrão corrigida; t o tempo de contagem (s); γ_p a abundância gama do padrão para a energia em consideração e V_p o volume do padrão (mL).

3.2.5 Determinação da área líquida

A medida da radiação de fundo é muito importante em instrumentação nuclear, pois mede o nível de radioatividade do ambiente no qual estão sendo realizadas as aquisições radiométricas. Para a contagem do BG, foi usado um recipiente de polietileno vazio, com a mesma geometria dos recipientes utilizados para contagem das amostras, obedecendo ao mesmo tempo de contagem (MALANCA et al., 1993). No final, a contagem de cada amostra analisada foi subtraída da contagem do BG (MCAULAY; MORAN, 1988; SANTOS; MARQUES, 2003), calculando-se assim, a contagem líquida da área do fotopico pela Equação 12 (CANBERRA, 1990), que foi utilizada no cálculo final da atividade de cada radionuclídeo.

$$N_{Ei} = \int_{a=u}^v X_a - BG \quad (12)$$

N_{Ei} é a área total líquida do fotopico de interesse (número total de impulsos por segundo); u é o canal inicial da região de interesse (ROI) do fotopico; v é o canal final da ROI do fotopico; X_a é a contagem em cada canal e BG é a contagem da radiação de fundo do laboratório.

Para os cálculos das atividades líquidas dos padrões utilizados na construção das curvas de eficiências, foram considerados como BG, as matrizes de solo com baixo nível de radiação nas quais os padrões foram inseridos, a radiação de fundo do laboratório e o recipiente de polietileno.

3.2.6 Resolução em energia

A resolução em energia é considerada o parâmetro mais importante para definir a função resposta do detector, sendo, por definição, calculada com base na medida da largura do fotopico na metade da altura máxima, (FWHM: Full Width at Half Maximum), considerando que a altura dos pulsos distribuem-se de forma aproximadamente normal em torno de um valor médio. O valor da resolução em energia foi obtido pela Equação 13 (KNOLL, 1998).

$$R = \frac{FWHM}{E} \times 100 \quad (13)$$

Onde: R é a resolução em energia; FWHM a medida da largura do fotopico à metade da altura máxima e E a transição média do fotopico. Quanto menor o valor de R, melhor a resolução do sistema em energia, de forma que transições mais próximas possam ser separadas. As interferências do sistema, tais como ruídos, fótons de baixa energia, e outras, influenciam para o alargamento do fotopico, diminuindo desta forma a resolução.

A medida da largura total do fotopico à metade da altura máxima, $FWHM_T$, pode ser calculada pela Equação 14 (KNOLL, 1989).

$$(FWHM)_T^2 = (FWHM)_D^2 + (FWHM)_X^2 + (FWHM)_E^2 \quad (14)$$

Admite-se que $(FWHM)_D^2$ representa a flutuação estatística no número de carregadores de cargas geradas no detector; $(FWHM)_X^2$ é a contribuição devido à coleta incompleta de carga e é mais significativa em detectores de volume grande e campo elétrico baixo. O terceiro fator $(FWHM)_E^2$, representa a contribuição do ruído eletrônico.

3.2.7 Estabilidade do sistema de medidas

Para verificar a estabilidade do sistema de medidas, foi realizado um estudo periódico comparativo da posição dos canais centrais e da largura dos fotopicos à meia altura (FWHM), com base nas energias utilizadas na determinação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K . Neste caso, a estabilidade foi verificada durante todo o período de aquisição. Com base no valor da FWHM, realizou-se a monitoração de possíveis alterações do sistema durante as análises. Em tal procedimento foi possível observar alterações no valor da resolução em energia dos espectros, permitindo assim, fazer as correções necessárias.

3.2.8 Limites de detecção

O limite mínimo de detecção (LD), para um espectrômetro gama representa a sua capacidade de detectar um fóton gama na presença de interferentes, tais como radiação de fundo, espalhamento Compton e ruídos do sistema de medidas. O LD depende do tipo de amostra a ser analisada, da energia da radiação, da geometria de contagem, do tipo de detector, da radiação de fundo e do tempo de contagem (SCHEIBEL, 2006).

Para o cálculo do limite de detecção foi realizada no HPGe a medida do recipiente vazio e da radiação de fundo do laboratório. Com a utilização da Equação 15, reformulada da IAEA, (1989), foi possível obter os valores dos LDs para as energias utilizadas na quantificação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

$$\text{LD} = 4,66 \times \sigma \quad (15)$$

Onde σ representa o desvio padrão associado ao fotopico de interesse e 4,66 é o fator correspondente a um nível de confiança maior que 95%.

3.2.9 Cálculo das atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K

Para calcular as atividades específicas experimentais do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , foi utilizada a Equação 16 (IAEA, 1989 apud TZORTZIS et al., 2003):

$$A = \frac{N_{Ei}}{\varepsilon \times I_{\gamma} \times t \times m} \quad (16)$$

onde: A é a concentração de atividade determinada para o radionuclídeo em consideração (Bq.kg^{-1}); N_{Ei} é a área total líquida do fotopico para a transição escolhida (contagens), determinada experimentalmente com o sistema de espectrometria gama utilizando a Equação 12; ε é a eficiência de contagem para a energia específica considerada ($\varepsilon \leq 1$); t é o tempo de contagem (s); I_{γ} é a abundância gama do radionuclídeo em consideração ($I_{\gamma} \leq 1$); e m é a massa da amostra analisada (kg).

Para calcular as atividades específicas do ^{226}Ra e do ^{232}Th foi utilizada a equação 17 (SCHEIBEL, 2006), considerando a média ponderada obtida em função dos fotopicos utilizados para cada radionuclídeo.

$$\bar{A} = \frac{[(A_1 / \sigma_1^2) + (A_2 / \sigma_2^2) + (A_3 / \sigma_3^2)]}{[(1 / \sigma_1^2) + (1 / \sigma_2^2) + (1 / \sigma_3^2)]} \quad (17)$$

Onde: A_1 , A_2 e A_3 são as atividades específicas obtidas pela Equação 16 para o ^{226}Ra com base nos fotopicos de 295, 352 e 609 keV, e para o ^{232}Th considerando as transições gamas de 338, 911 e 969 keV, e σ_1 , σ_2 e σ_3 , são os respectivos desvios médios.

3.2.10 Cálculo dos teores

Os teores do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K foram estimados pela Equação 18 (TZORTZIS; TSERTOS 2004), utilizando-se as medidas empíricas das atividades desses radionuclídeos:

$$F_E = \frac{M_E \times \varphi}{\lambda_E \times N_A \times f_{A,E}} \times A_E \quad (18)$$

F_E representa a fração do elemento E na amostra; M_E , λ_E , $f_{A,E}$ e A_E são respectivamente a massa atômica (kg.mol^{-1}), a constante de decaimento (s^{-1}), a fração atômica de abundância natural e a medida da atividade específica (Bq.kg^{-1}) do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th ou ^{40}K ; N_A é o número de Avogadro ($6,023 \times 10^{23}$ átomos. mol^{-1}); e φ é uma constante com valor de 1.000.000 para o U, Ra e Th ou de 100 para o K. As concentrações são calculadas nas proporções de mg.kg^{-1} para urânio, rádio e tório e em percentagem para o potássio.

Convém observar que a Equação 18 pode ser expressa simplificadamente pela Equação 19, que foi utilizada neste trabalho.

$$F_E = \frac{A_{\text{exp}}}{A_{\text{esp}}} \quad (19)$$

Os teores (fração do elemento, F_E) são calculados diretamente pela razão entre as atividades específicas obtidas experimentalmente para cada radionuclídeo (A_{exp}), considerando a unidade de medida em Bq.kg^{-1} e as atividades específicas teóricas, de cada radionuclídeo (A_{esp}), calculadas em Bq.kg^{-1} . Assim, os valores são obtidos na proporção de mg.kg^{-1} .

3.3 Estimativa da dose de radiação gama natural

3.3.1 Cálculo da taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural

A taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural ($\dot{D}$), ao ar livre a 1 m de distância da superfície, foi calculada usando os fatores de conversão de dose estabelecidos pela UNSCEAR em 1988, conforme mostrados na Equação 20 (SELVASEKARAPANDIAN et al., 2000; KANNAN et al., 2002):

$$\dot{D} = (0,662 \times A_{Th} + 0,427 \times A_U + 0,043 \times A_K) [nGy.h^{-1}] \quad (20)$$

onde: A_{Th} , A_U e A_K são respectivamente as atividades médias do ^{232}Th , ^{238}U e do ^{40}K obtidas para as amostras de solo e rochas.

3.3.2 Cálculo da taxa de dose equivalente efetiva devido a radiação gama natural

Considerando que na área de proteção radiológica a taxa de dose equivalente efetiva é usualmente empregada, foi efetuada a estimativa da taxa de dose equivalente efetiva para radiação gama natural a 1 m da superfície, segundo o relatório da UNSCEAR (1993, 2000) apud TZORTZIS et al. (2003) pela Equação 21, considerando um período de exposição de um ano:

$$\dot{H} = \dot{D} \times 24h \times 365,25d \times 0,2 \times 0,7 Sv Gy^{-1} \times 10^{-3} \quad (21)$$

$\dot{H}$ é a taxa de dose equivalente efetiva de radiação gama natural no ar a 1 m da superfície ($mSv.a^{-1}$); $\dot{D}$ é a taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural ($nGy.h^{-1}$); 0,2 é o fator ocupacional (ocupação parcial); 0,7 é o coeficiente de conversão da taxa de dose absorvida para taxa de dose equivalente efetiva e o valor 10^{-3} é o fator que transforma $nSv.a^{-1}$ para $\mu Sv.a^{-1}$. Os valores convertidos podem ser comparados com os

limites de dose recomendados pela Agencia Internacional de Energia Atômica (IAEA – International Atomic Energy Agency).

3.3.3 Rádio Equivalente

A atividade equivalente do rádio, também chamada de rádio equivalente (Ra_{eq}), é um outro parâmetro utilizado para estimar a atividade devida a contribuição dos principais emissores gamas das séries do ^{238}U , do ^{232}Th e do ^{40}K . A Equação 22 foi utilizada para calcular o valor do Ra_{eq} (FLORES et al., 2005):

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1,43A_{Th} + 0,077A_K \quad (22)$$

onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K são respectivamente, as concentrações radiológicas, ou atividades específicas do ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , medidas experimentalmente por espectrometria gama de alta resolução.

Segundo a literatura consultada (UNSCEAR, 1977 apud TAHIR et al., 2005), o efeito anual de dose produzida pelo Ra_{eq} de 370 Bq.kg^{-1} corresponde ao limite de dose de $1,0 \text{ mSv}$ para indivíduos do público. Convém observar que o Ra_{eq} está sendo utilizado mundialmente na certificação de materiais de construção para exportação, é uma forma rápida e alternativa de estimar os níveis de radioatividade natural nesses materiais. Ainda são poucos os estudos correlacionados ao cálculo do Ra_{eq} como forma de estimar a exposição gama devido aos radionuclídeos primordiais. Praticamente não existem estudos ambientais que correlacionem este parâmetro como forma alternativa de determinar os níveis de radiação no meio ambiente, uma proposta assumida por este trabalho.

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Padronização da metodologia

Um dos aspectos mais importantes da pesquisa científica é a padronização da metodologia. Para o uso da metodologia proposta, alguns parâmetros fundamentais são indispensáveis; a fim de minimizar os erros operacionais e sistemáticos. Os parâmetros padronizados para os ensaios foram: calibração do sistema de medidas (energia e resolução), verificação da estabilidade do sistema de medidas, construção das curvas de eficiências, padronização do tempo de contagem com adequação à geometria do recipiente para o volume de massa também padronizado, determinação do limite de detecção para os fotopicos utilizados, e por fim a validação da metodologia.

4.1.1 Curvas de calibração

4.1.1.1 Energia

Para obtenção da curva de calibração do sistema de medidas, (energia versus canal) foram utilizadas as principais transições gamas dos padrões de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{57}Co , ^{60}Co e ^{152}Eu , com base nas sugestões da IAEA, conforme documento técnico TECDOC-619 (IAEA, 1991). A Figura 4 apresenta uma das curvas de calibração obtida com o padrão de ^{152}Eu , os modelos das fontes utilizadas na pré-calibração e calibração do sistema de medidas, as medidas experimentais e o ajuste linear. Observa-se que neste ajuste todas as medidas experimentais praticamente coincidem com a reta linear teórica, obtendo-se um coeficiente de ajuste linear de 0,9999 (Figura 4).

Convém observar também que o sistema de medidas apresenta uma estabilidade muito boa. Contudo, para certificação desta estabilidade, foram realizados testes com padrões no intervalo de cada medida empírica realizada.

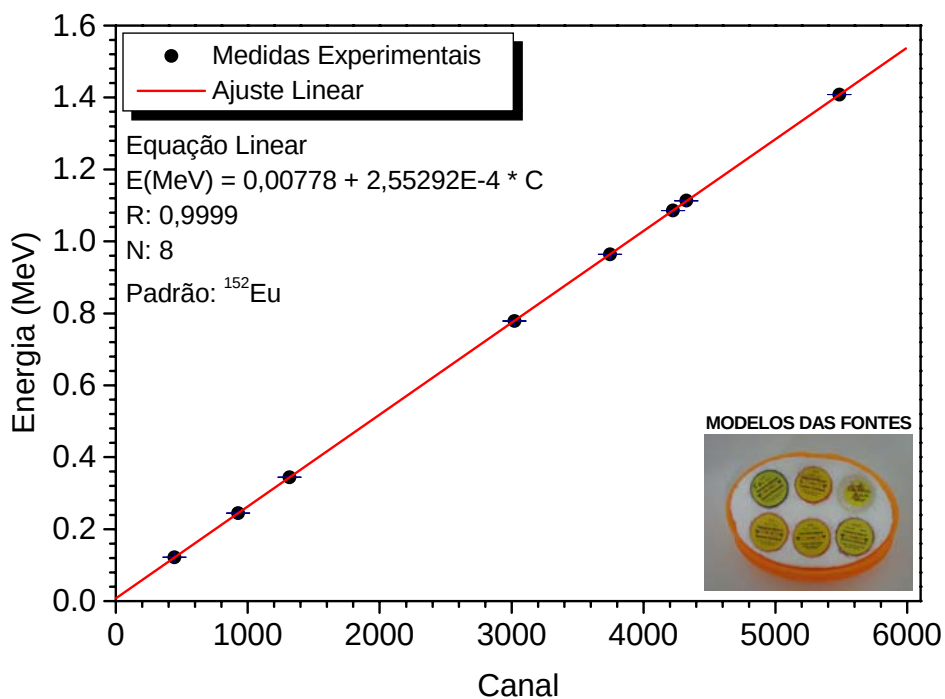


Figura 4. Reta de calibração do sistema de medidas utilizando transições gamas do ^{152}Eu .

Pelos parâmetros experimentais obtidos na reta de calibração da Figura 4, foi estabelecida a Equação 23, que permitiu corrigir os dados experimentais e determinar as energias em função da localização dos canais centrais:

$$E = 7,78 \times 10^{-3} + 2,55 \times 10^{-4} \times C \quad (23)$$

onde E representa a energia a ser determinada (MeV) em função da localização do fotopico no canal central (C).

4.1.1.2 Resolução

A Figura 5 apresenta a curva de calibração (energia versus FWHM) obtida em função do padrão de ^{152}Eu , descrito anteriormente. Observa-se que é comum uma melhora na resolução para altas energias. Porém, para o gráfico experimental proposto, existe um intervalo para o qual a resolução é menor.

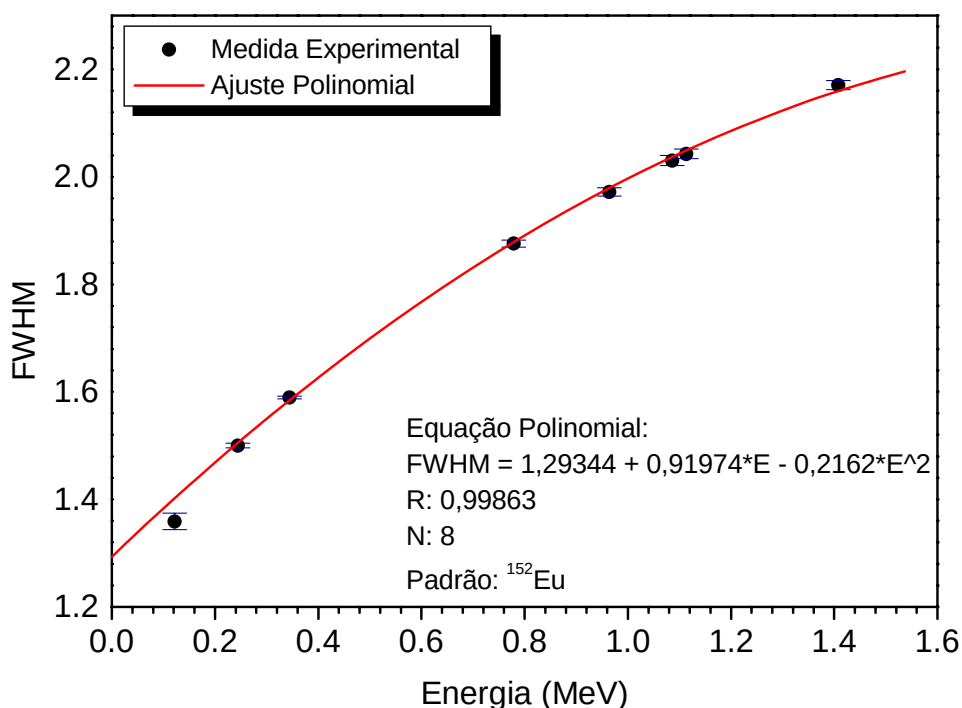


Figura 5. Curva de calibração em função do FWHM e da energia.

A Tabela 7 apresenta os valores das resoluções em energia utilizadas na avaliação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K . Observa-se que a resolução melhora na proporção em que aumenta a transição energética, considerando que os valores de R estão tendendo a 0%. A Figura 6 mostra o comportamento da resolução em energia para cada radionuclídeo analisado.

Tabela 7. Resolução em energia para as transições gamas utilizadas na qualificação dos radionuclídeos de interesse.

RADIONUCLÍDEO	E_γ (keV)	R (%)
^{238}U	63	1,28
	295	0,36
^{226}Ra	352	0,31
	609	0,21
^{232}Th	338	0,36
	911	0,16
^{40}K	969	0,16
	1.461	0,12

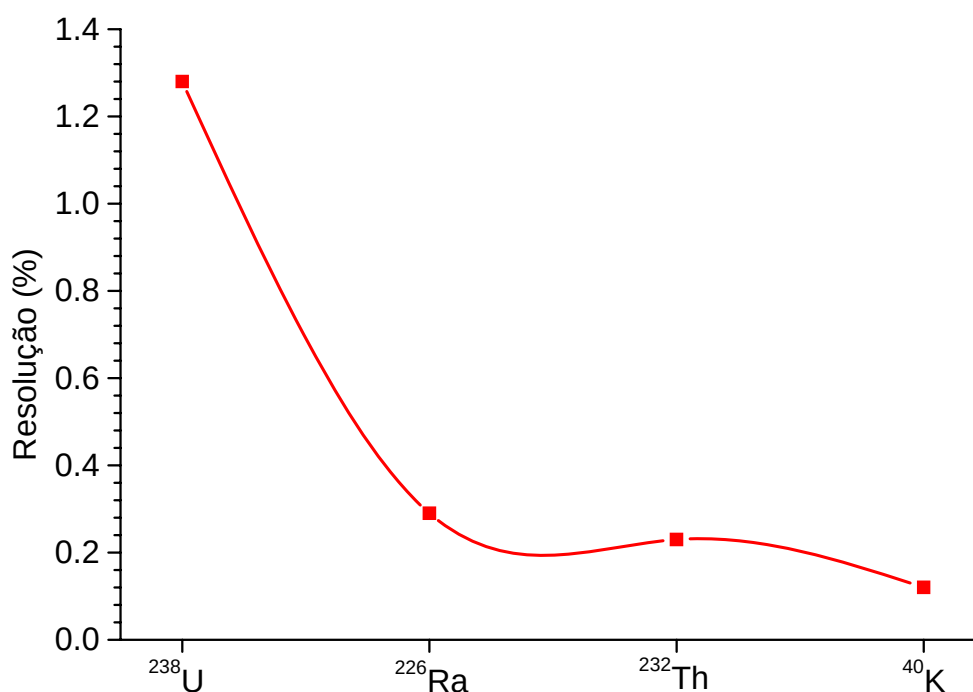


Figura 6. Resolução estimada para as transições gamas utilizadas na determinação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

Observa-se que entre os valores calculados, a menor resolução foi obtida para a energia de 63 keV. Isto se deve ao baixo valor deste fotopico, devido a interferência do efeito Compton e das flutuações sobre o sistema de medidas, o que gera uma maior interferência nesta faixa de energia. Conforme relatado anteriormente, a resolução melhora com o aumento da energia. Pela Figura 6, apresentada anteriormente, é possível observar

com mais clareza a melhora da resolução média com o aumento da energia na determinação dos fotopicos que identificam a presença do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

4.1.2 Estabilidade do sistema de medidas

Nas Figuras 7, 8 e 9 observa-se o comportamento dos parâmetros analisados para certificação da operacionalidade do sistema de medidas para as energias utilizadas na qualificação dos radionuclídeos de interesse.

Para observar o comportamento do sistema de medidas, foram realizadas 33 análises de amostras ambientais, incluindo solos e rochas, durante o período das aquisições, estabelecendo-se o critério da identificação do fotopico de interesse pelo canal central e pelo valor da FWHM nas regiões de interesse.

Para certificar a disposição dos canais por fotopico e sua variabilidade, foi calculado o coeficiente de variação de Pearson (CV), considerando o valor médio para representação do canal central e o desvio padrão associado.

O fotopico de 63 keV foi padronizado no canal central 235, com dispersão das medidas realizadas no intervalo de 234 a 236, apresentando CV de 0,24%, uma variação estatisticamente insignificante. Para os demais fotopicos, foi observado que: a energia de 295 keV, canal o médio foi de 1213 (1212-1216) com variação de 0,07%; fotopico de 338 keV, média de 1395 (1393-1398) com 0,07% de variação; para 352 keV o canal médio foi de 1452 (1451-1456) 0,08%; 609 keV foi de 2539 (2536-2546) 0,08%; para a energia de 911 keV, o canal disponível na calibração foi de 3814 (3810-3824) 0,08%; para 969 keV foi 4057 (4050-4065) 0,07% e por último, para a energia de 1.461 keV foi ajustado o canal de 6134 (6127-6150) com 0,07% de dispersão, o que permite concluir que o sistema manteve-se estável durante todo o período das aquisições, com flutuações estatísticas desprezíveis.

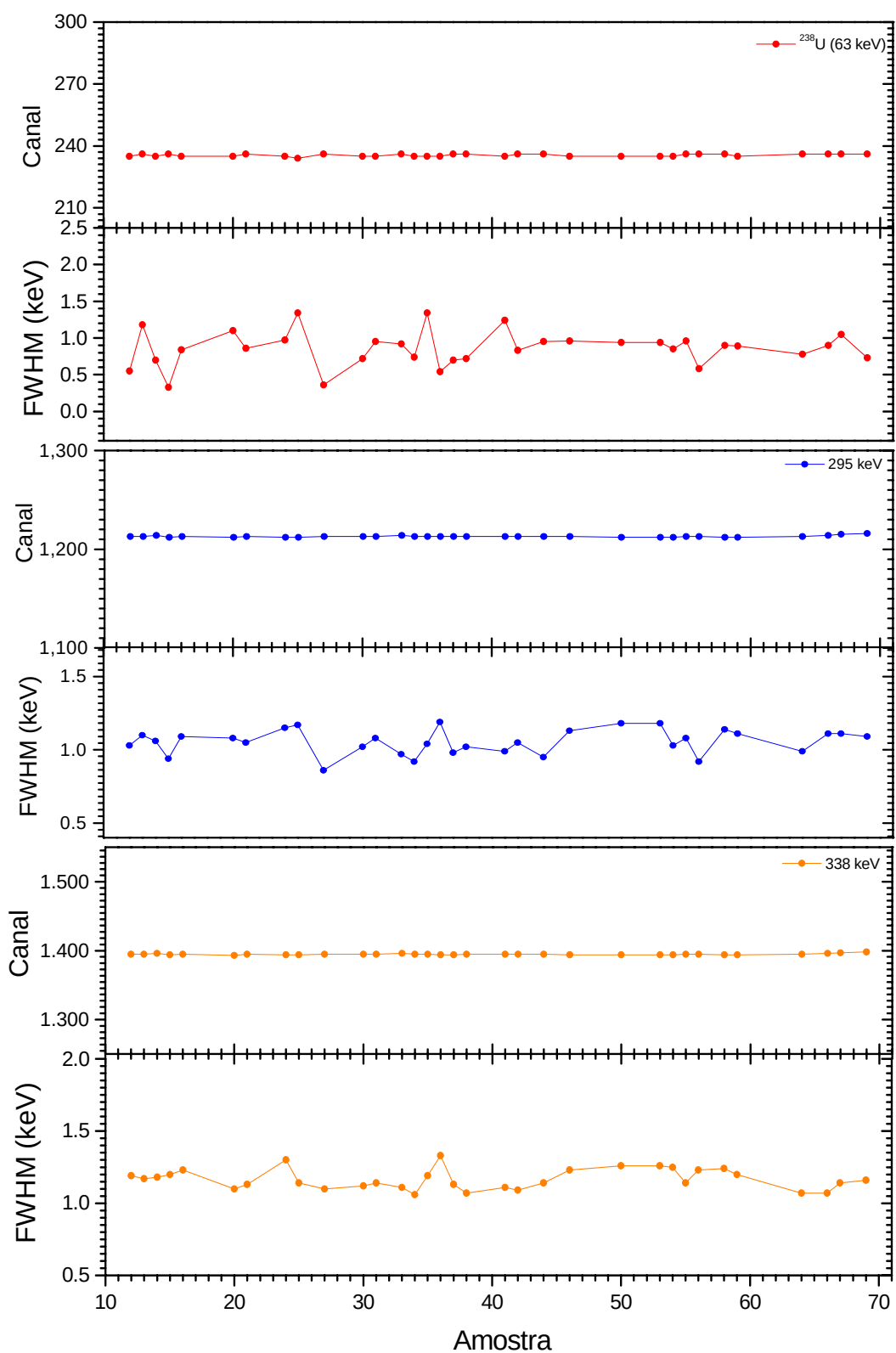


Figura 7. Estabilidade do sistema de medidas nas transições de 63, 295 e 338 keV.

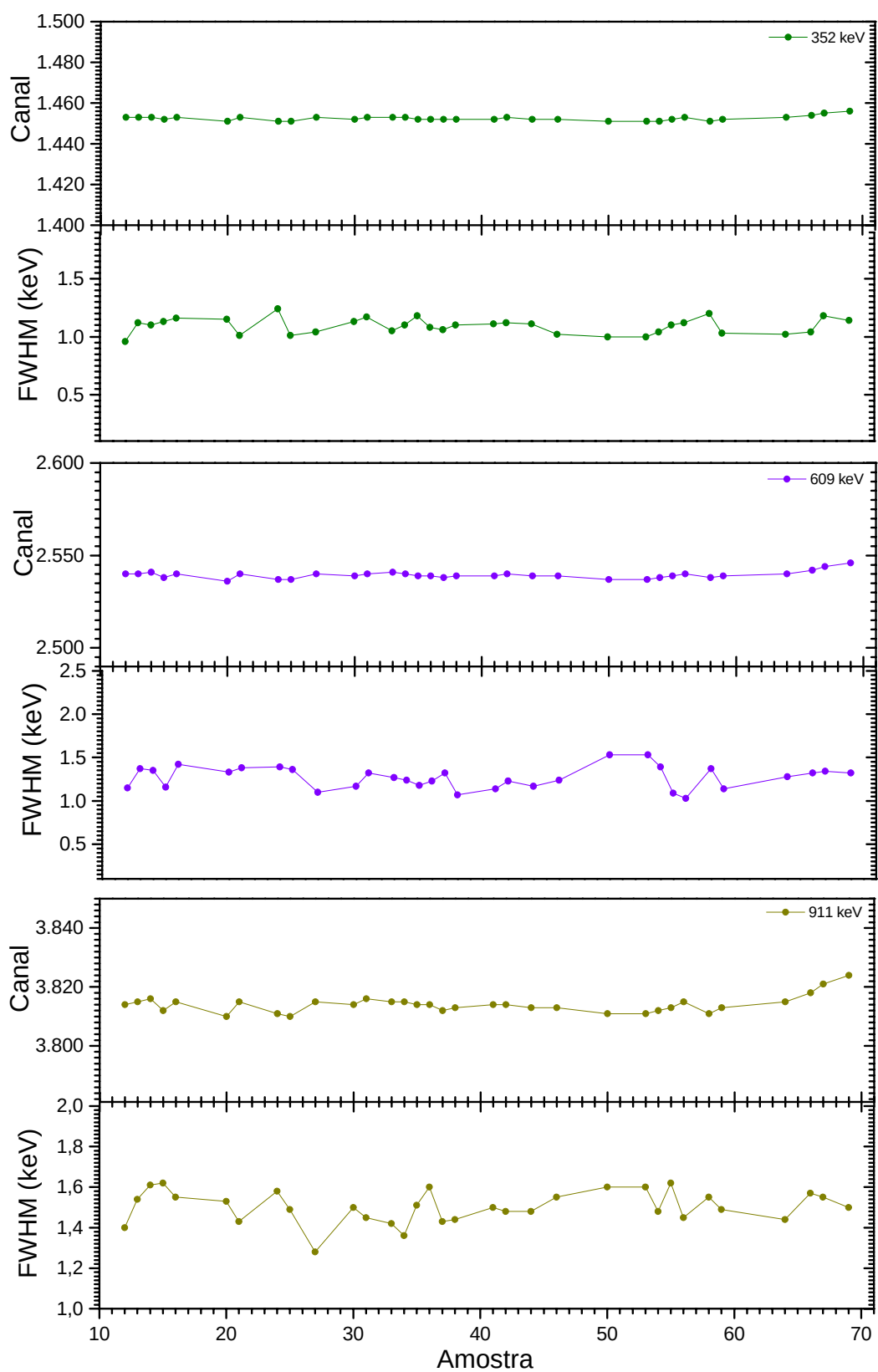


Figura 8. Estabilidade do sistema de medidas nas transições de 352, 609 e 911 keV.

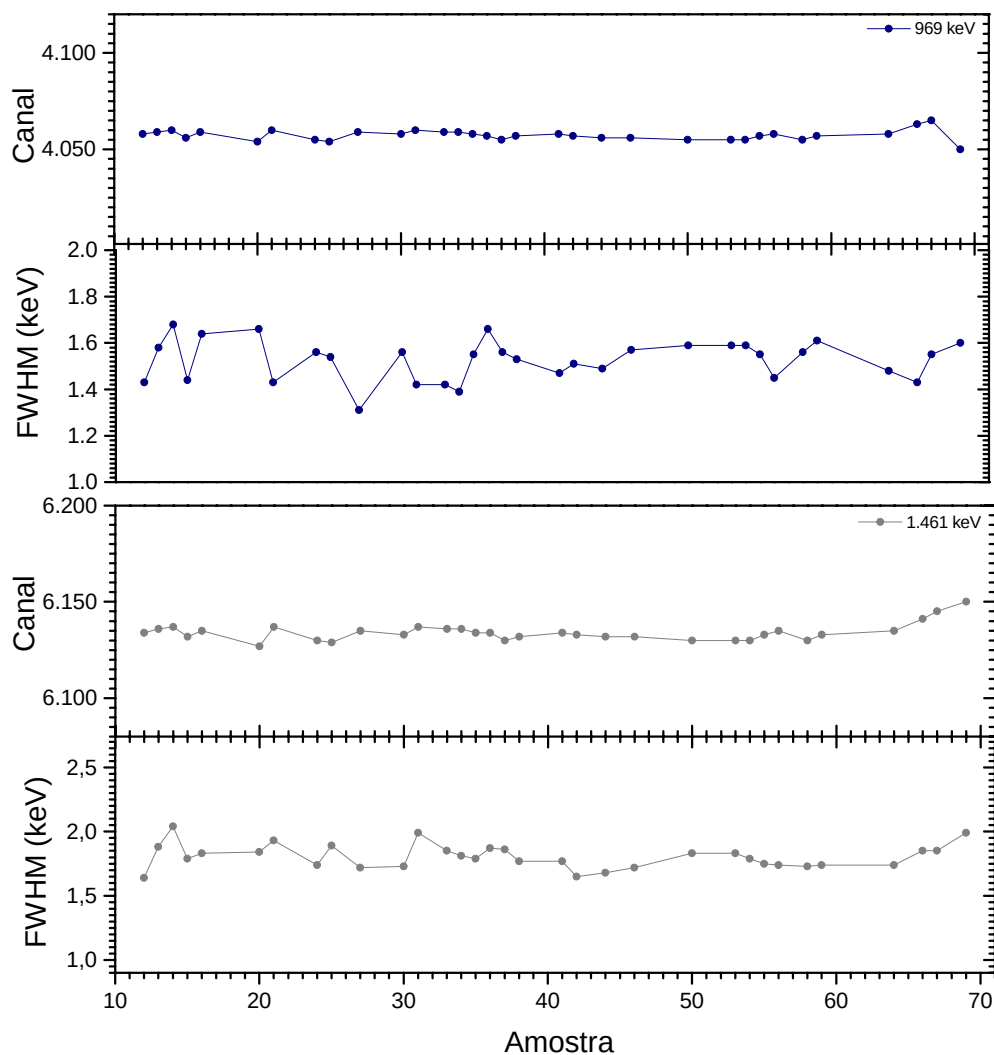


Figura 9. Estabilidade do sistema de medidas nas transições de 969 e 1.461 keV.

4.1.3 Curvas de eficiências

As curvas de eficiências, como já foi mencionado anteriormente, estão entre os principais parâmetros para se trabalhar com espectrometria gama. As Figuras 10, 11, 12 e 13 apresentam estas curvas obtidas experimentalmente pelas medidas dos padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu para determinação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K . O primeiro padrão apresenta

baixas energias, especificamente a transição gama de 59,54 keV (maior probabilidade de emissão), essencial para o ajuste em baixas energias, como é o caso da energia proposta para determinação do ^{238}U (63 keV).

Na Figura 10 observa-se a curva de eficiência 1 para as medidas realizadas a 0 cm do HPGe com MCA de 8.196 canais. O distanciamento das amostras em relação ao detector foi estabelecido em função do tempo morto, ou seja, para amostras com tempo morto inferior a 1% a geometria estabelecida foi a 0 cm de distância do detector.

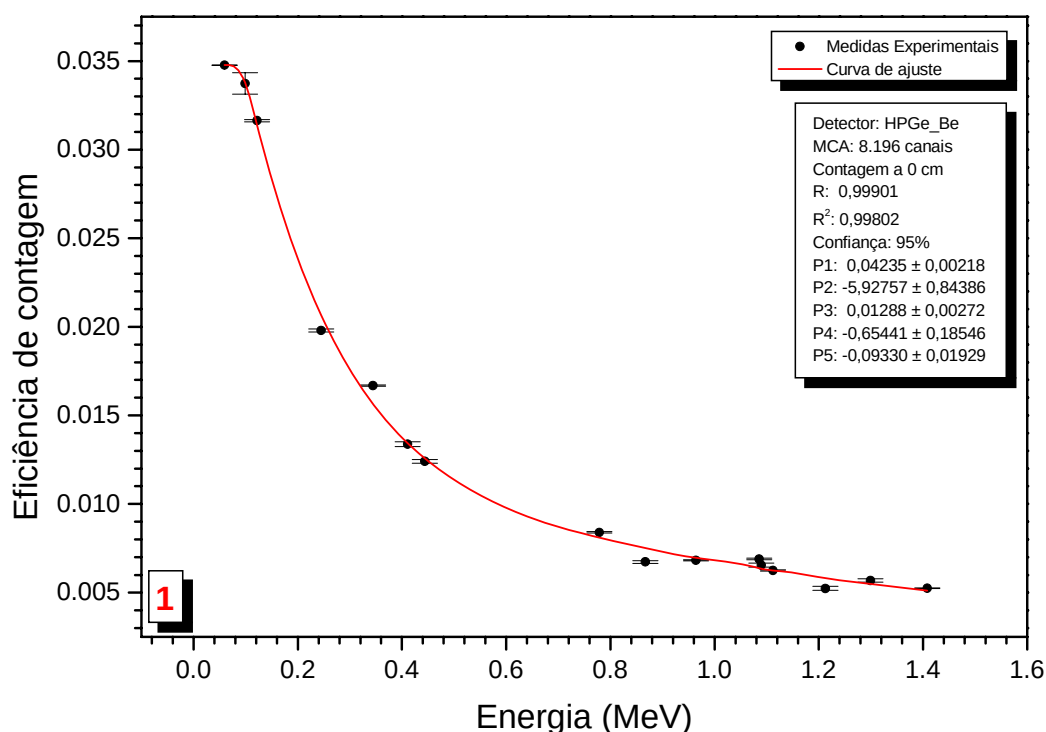


Figura 10. Curva de eficiência para contagens a 0 cm do detector e 8.196 canais.

Devido às altas taxas de contagem observadas para algumas amostras de rochas anômalas em urânio, o tempo morto teve um aumento significativo, chegando a aproximadamente 30%. Mediante o número de contagens perdidas pelo detector, foi estabelecida uma nova curva de eficiência, para uma geometria a 16 cm do HPGe (Figura

11, curva de eficiência 2), de forma a minimizar o tempo morto, corrigindo as eficiências de contagens para as medidas realizadas a 16 cm de distância.

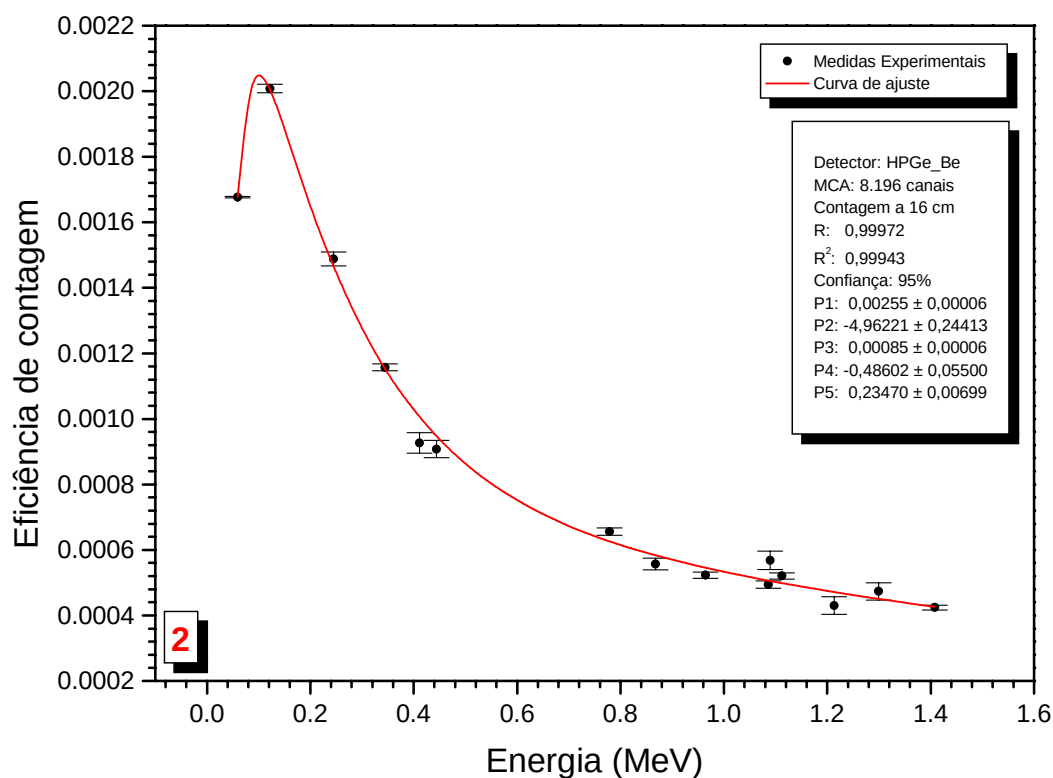


Figura 11. Curva de eficiência para contagens a 16 cm do detector e 8.196 canais.

A Figura 12 apresenta a curva de eficiência 3, estabelecida para o HPGe com MCA de 4.096 canais. Este procedimento foi realizado devido a um problema técnico que interferiu diretamente no funcionamento do MCA de 8.196 canais. Com base neste procedimento, novos parâmetros foram estabelecidos para os cálculos das atividades das amostras medidas nessas condições. Com a correção do MCA de 8.196 canais, foi estabelecida uma nova construção para a curva de eficiência 4 (Figura 13). Para a realização das medidas foram estabelecidas diferentes arranjos experimentais, sendo necessária a reformulação dos parâmetros de medidas, garantindo desta forma maior confiabilidade aos resultados.

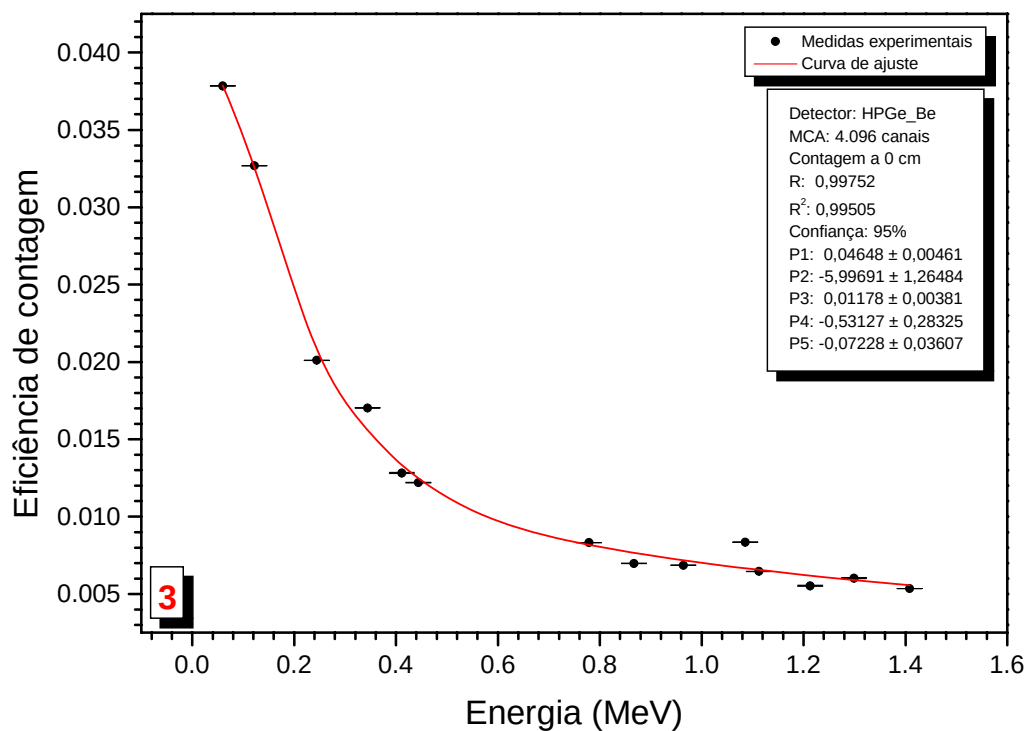


Figura 12. Curva de eficiência para contagens a 0 cm do detector e 4.096 canais.

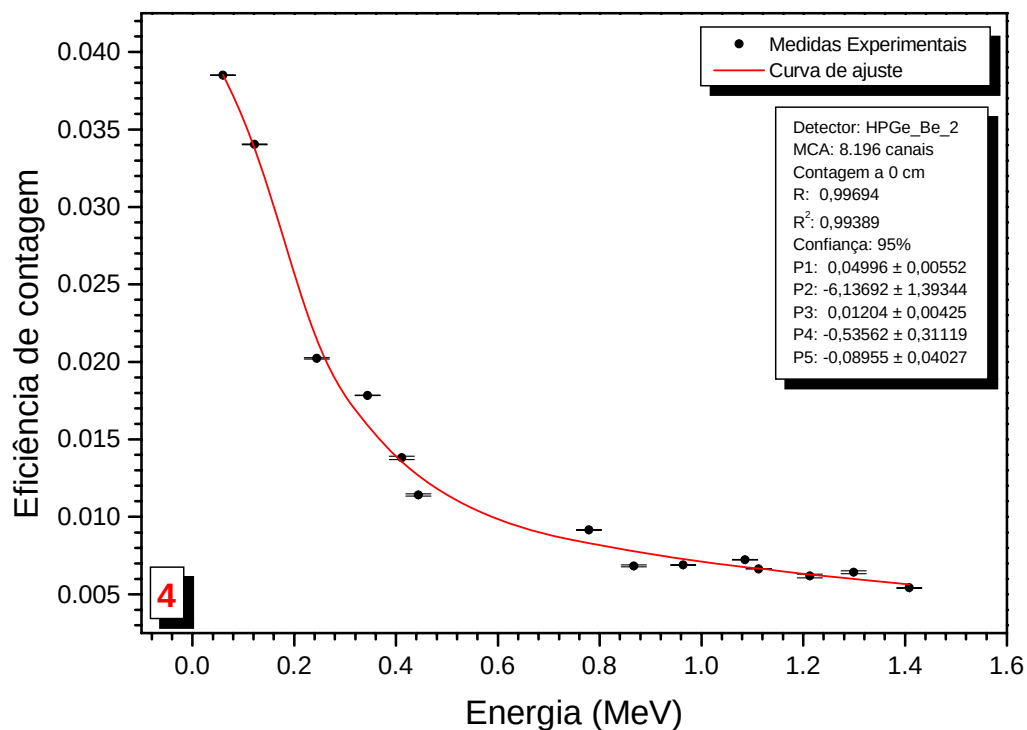


Figura 13. Curva de eficiência para contagens a 0 cm do detector e 8.196 canais.

Os ajustes das curvas foram realizados com base em um software que possibilitou estabelecer os parâmetros utilizados nos cálculos das eficiências de contagens. Com os parâmetros obtidos a partir desse software, foi estabelecida a Equação 24, que permitiu obter o ajuste da eficiência para os diferentes fotopicos utilizados, estabelecendo-se com base nesta, as medidas das atividades dos radionuclídeos de interesse.

$$\varepsilon = (p_1 \cdot e^{E \cdot p_2} + p_3 \cdot e^{E \cdot p_4}) \cdot e^{-\mu \cdot p_5} \quad (24)$$

Nesta equação, ε é a eficiência de contagem; p_1, p_2, p_3, p_4 e p_5 , são os parâmetros definidos pelo software para o ajuste da curva; E é a energia para a qual deseja-se calcular a eficiência de contagem e μ é o coeficiente de atenuação de massa, definido pela Equação 25, considerando a_1, a_2, a_3 e a_4 os parâmetros utilizados para as características do detector.

$$\mu = a_1 \cdot E^{a_2} + a_3 \cdot E^{a_4} \quad (25)$$

A Tabela 8 apresenta os valores dos parâmetros obtidos pelas correções das eficiências e utilizados para os cálculos das eficiências de contagens ajustadas pelas curvas de eficiências.

Tabela 8. Parâmetros utilizados para o ajuste das curvas de eficiências.

PARÂMETRO	FIGURA 10	FIGURA 11	FIGURA 12	FIGURA 13
P ₁	0,042 ± 0,002	0,003 ± 0,000	0,047 ± 0,005	0,050 ± 0,006
P ₂	-5,928 ± 0,844	-4,962 ± 0,244	-5,997 ± 1,265	-6,137 ± 1,39
P ₃	0,013 ± 0,003	0,001 ± 0,000	0,012 ± 0,004	0,012 ± 0,004
P ₄	-0,654 ± 0,186	-0,486 ± 0,055	-0,531 ± 0,283	-0,536 ± 0,311
P ₅	-0,093 ± 0,019	0,235 ± 0,007	-0,072 ± 0,036	-0,090 ± 0,040
A ₁		0,0587		
A ₂		-0,4160		
A ₃		0,0005		
A ₄		-2,9430		

Como se pode observar por esta tabela, os parâmetros do detector não foram alterados, pois suas características não sofreram modificações. As diferenças nos valores

estabelecidos pelos ajustes das curvas se devem às alterações da geometria de contagem devido aos altos níveis de radioatividade encontrados em algumas amostras, e aos multi-canais utilizados. Pelas constantes apresentadas na Tabela 8, foram calculadas as eficiências de contagens utilizadas nos cálculos das atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K e certificadas por padrões radioativos elaborados especialmente para esses procedimentos.

4.1.4 Limites de detecção (LD)

Como visto anteriormente, o limite mínimo de detecção (LD), depende de alguns parâmetros utilizados na Equação 15 e é imprescindível para medidas de baixo nível de detecção na faixa de emissão em estudo. Os cálculos dos LDs para as energias utilizadas na quantificação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K foram realizados pela Equação 15 proposta anteriormente. A Tabela 9 apresenta os valores dos LDs obtidos para os fotopicos utilizados na determinação desses radionuclídeos.

Tabela 9. Limites de detecção (LD) para as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

RADIONUCLÍDEO	LD (Bq. kg⁻¹)
^{238}U	2,8
^{226}Ra	0,6
^{232}Th	0,2
^{40}K	4,7

A Figura 14 apresenta um espectro gama para uma amostra de solo com baixa radiação, normalmente utilizada nos cálculos dos limites de detecção, e um espectro característico da medida do BG utilizado para quantificar os LDs. Com base nesta figura, é possível verificar a influência da radiação de fundo na contagem da amostra, permitindo concluir que a amostra apresenta baixa atividade. Observam-se também alguns fotopicos mais intensos ao longo dos dois espectro, característicos de amostras ambientais (solos e rochas), ou seja, o BG do laboratório apresenta alguns fotopicos que se destacam pela

presença de radionuclídeos naturais, conforme apresentado na contagem da amostra de solo, normalmente, influências da composição do piso do laboratório. Quanto menor a influência do BG no espectro, maior a atividade radioativa da amostra analisada, de modo que, para amostras muito ativas, a influência do espectro do BG pode ser negligenciada.

Devido à presença de altos níveis de radionuclídeos naturais, principalmente o ^{40}K , na contagem do BG, os valores foram estimados com base nos desvios padrões associados às medidas (ver Equação 15).

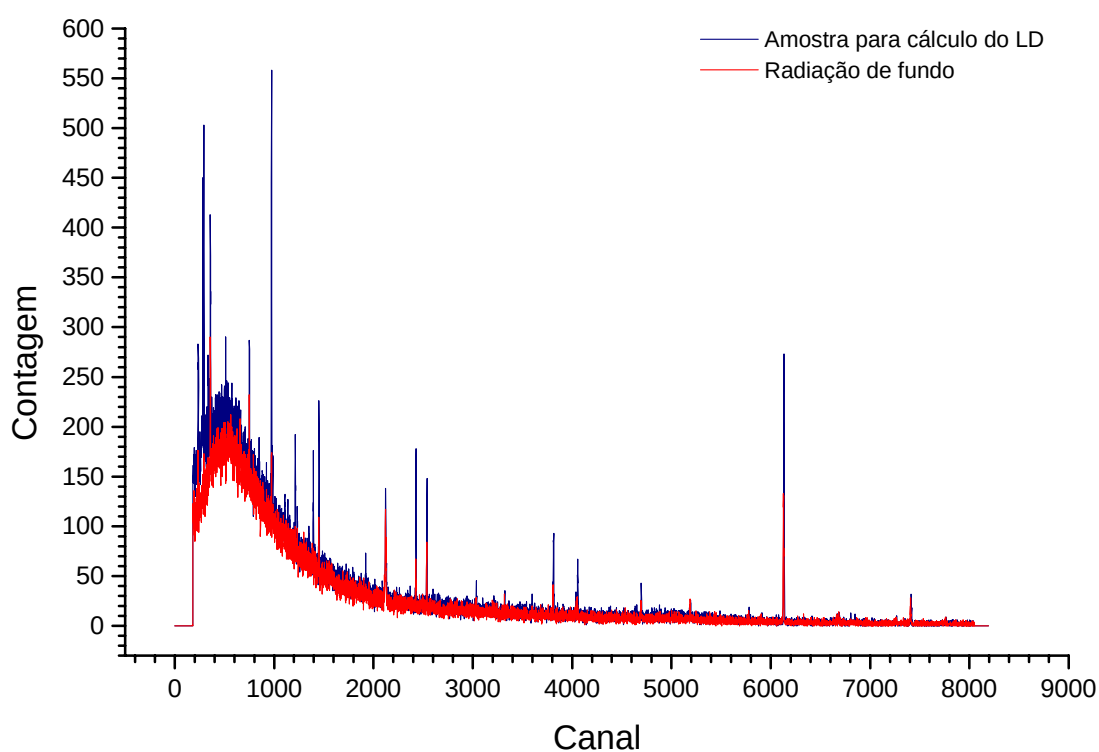


Figura 14. Espectro de uma amostra de solo com baixa atividade e influência da radiação de fundo do laboratório para o cálculo do limite de detecção.

4.1.5 Validação da metodologia

Para certificar a confiabilidade dos ajustes realizados pelas equações de eficiência (Equações 24 e 25), garantindo um alto grau de precisão nos cálculos das atividades específicas, foram utilizadas fontes padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu . Para minimizar o efeito da auto-absorção, os padrões foram inseridos em matrizes de solos e rochas, onde foram padronizadas nas mesmas condições utilizadas para as análises das amostras (massa, volume, tempo de contagem, geometria, etc). A Tabela 10 apresenta os valores das atividades dos padrões de referência (A_{ref}) e seus valores obtidos experimentalmente em função das curvas de eficiência (A_{exp}). Para o ^{241}Am utilizou-se o fotopico gama de 59,5 keV com 36,0% de probabilidade de emissão, ou seja, o fotopico de maior abundância. No caso do ^{152}Eu foram utilizados os fotopicos de 121,8 keV (28,4%); 344,3 keV (26,6%); 1.408,0 keV (20,8%) e 1.112,1 keV (13,5%).

Tabela 10. Atividades específicas dos padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu .

PADRÃO	$A_{\text{ref.}} (\text{kBq.kg}^{-1})$	$A_{\text{exp.}} (\text{kBq.kg}^{-1})$
^{241}Am	78,20	$80,02 \pm 0,16$
^{152}Eu	3,91	$3,90 \pm 0,01$

Os resultados obtidos validam a metodologia, pois demonstram concordância aceitável entre as atividades de referência e experimental. Para o ^{241}Am em baixa energia, o desvio padrão foi de aproximadamente $1,29 \text{ kBq.kg}^{-1}$, com erro padrão médio de 1,63%. Para as energias do ^{152}Eu , energias superiores a 100 keV, a concordância entre as atividades A_{ref} e A_{exp} foi completa, apresentando um pequeno desvio padrão da ordem de $0,0071 \text{ kBq.kg}^{-1}$, e um erro padrão médio de aproximadamente 0,18%, praticamente desprezível. Com os resultados obtidos, observa-se uma excelente concordância entre os valores dos padrões certificados e os dados obtidos empiricamente, validando desta forma as curvas de calibração em eficiência. Para energias abaixo de 100 keV existe uma pequena discordância entre as atividades dos padrões e os dados experimentais; mesmo

assim, em decorrência das pequenas variações, esses erros estão dentro dos limites aceitáveis.

4.2 Análise microscópica da rocha uranífera

Para verificar a composição das rochas, foram realizadas análises por difratometria de raios-X. Os resultados obtidos indicaram a uraninita parcialmente oxidada, associada a maghemita (Fe_2O_3), mineral de cor escura e alta susceptibilidade magnética. Para interpretação destes dados, foi realizada uma análise dos principais picos obtidos no difratograma com os valores já existentes na literatura.

Também foi realizada a análise modal das amostras de rochas. A análise modal revelou a seguinte composição: 48,6% de plagioclásio; 23,7% de piroxênio; 21,2% de anfibólio; 5,4% de maghemita; 0,7% de apatita, e 0,4% de uraninita (em média).

Tendo como parâmetro básico o peso específico da rocha de aproximadamente $3,2 \text{ g.ml}^{-1}$, determinado experimentalmente, a densidade média da uraninita de $9,4 \text{ g.ml}^{-1}$ (DANA, 1986), e o teor médio de urânio na uraninita ($\text{UO}_2 - \text{U}_3\text{O}_8$) de 86,5%, definido estequiometricamente, foi calculado o teor médio de urânio nas amostras de rochas, como sendo maior do que 1,0% ou seja, superior a $10.000 \text{ mg.kg}^{-1}$. Com os resultados obtidos foi possível classificar a rocha anômala como sendo uma cálcio-silicática anfíbolítica, um tipo de rocha metamórfica que normalmente não apresenta urânio associado (WEDEPOHL, 1978).

Não se tem, ao certo, explicações para os elevados níveis de minerais radioativos existentes na composição da rocha cálcio-silicática anfíbolítica, porém, estima-se que, originalmente existia uma lente de marga cuja argila adsorveu quantidade elevada de urânio proveniente de uma fonte desconhecida. Posteriormente, por intrusão de um magma granítico durante o processo de metamorfismo regional, essa lente foi transformada na atual rocha cálcio-silicática anfíbolítica. A Figura 15 apresenta fotos microscópicas de uma lâmina da rocha cálcio-silicática anfíbolítica coletada nas áreas anômalas das fazendas F1 e F2 (ver mapa da Figura 2). A captura de imagem foi realizada com um microscópio óptico binocular, marca Leica, modelo DME com sistema fotográfico digital para captura de imagens, modelo DC150 com câmara fotográfica digital Cânon Power Shot S70 e

resolução de 7.1 Mpixel, pertencente ao Laboratório de Modelagem e Biodosimetria Aplicada do Grupo de Estudos em Radioproteção e Radioecologia do Departamento de Energia Nuclear (DEN) da Universidade Federal de Pernambuco (UFPE).

A região em destaque (seta e círculo vermelhos) na Figura 15, indica posições de alguns halos metamictos formados em decorrência da presença de material radioativo, cuja radiação torna isotrópica ao seu redor, a rede cristalina dos grãos hospedeiros.

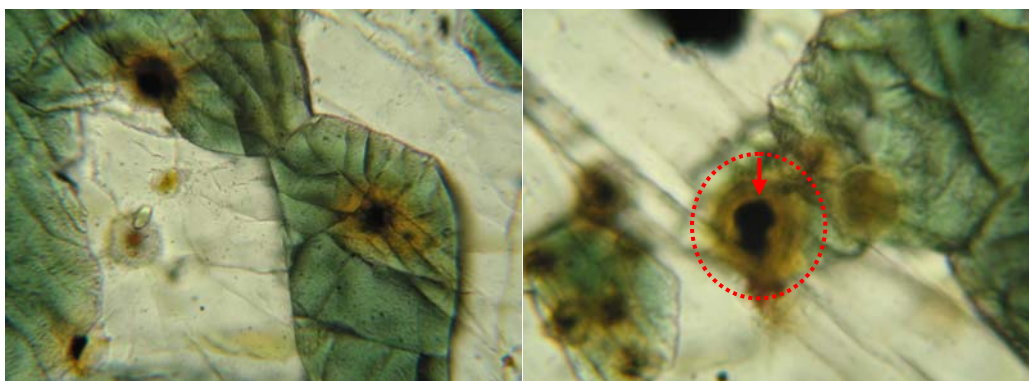


Figura 15. Fotos microscópicas da rocha cálcio-silicática anfibolítica da fazendas F2. Aumento 400x.

Observa-se que esta pequena área da lâmina contém um grande número de halos iguais ao indicado pela área destacada em vermelho, caracterizando a presença de grande quantidade de minerais radioativos neste tipo de rocha.

4.3 Análise dos espectros

Os espectros gamas foram analisados previamente pelo software Genie-2000 da Canberra[®], sendo possível a identificação dos fotopicos correspondentes aos radionuclídeos de interesse, o procedimento de análise para obtenção da contagem líquida, e consequentemente, o cálculo das atividades específicas correspondentes. Para dar uma idéia da análise qualitativa efetuada pela interpretação espectral, foram selecionadas quatro amostras dos diferentes tipos, rocha cálcio-silicática anfibolítica, rocha granítica e o solo

derivado, coletadas nos afloramentos das fazendas F1 e F2, onde foram localizados os maiores níveis de radioatividade.

As Figuras 16, 17, 18 e 19 mostram os espectros obtidos do afloramento de rocha cálcio-silicática anfibolítica da ocorrência F2, da rocha granítica proveniente da fazenda F1, solo coletado em torno da fazenda F2 e solo do afloramento da fazenda F1, respectivamente. Com base no espectro apresentado na Figura 16, pode-se observar altas intensidades para os fotopicos do ^{234}Th (63 keV), utilizado para medida do ^{238}U ; ^{214}Pb (295, 352 keV) e ^{214}Bi (609 keV), utilizados para medidas do ^{226}Ra . Por outro lado, verificou-se praticamente a inexistência dos fotopicos do ^{228}Ac (338, 911 e 969 keV) que são utilizados para qualificação e quantificação do ^{232}Th e o fotopico do ^{40}K (1.461 keV), ou seja, as atividades específicas desses dois últimos radionuclídeos na rocha cálcio-silicática anômala do afloramento da fazenda F2 apresentaram-se abaixo do limite de detecção.

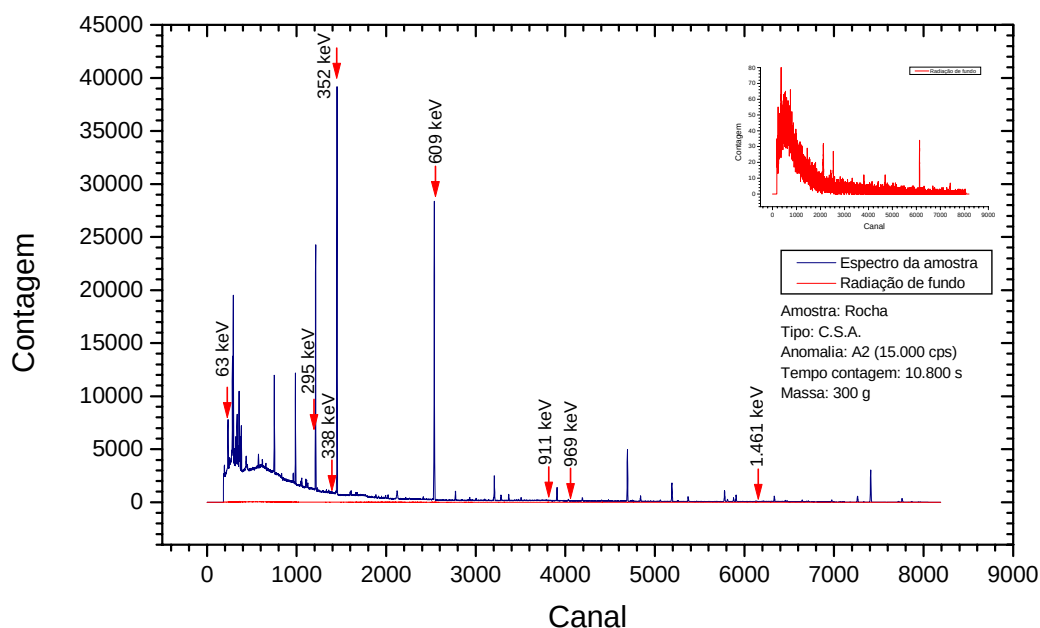


Figura 16. Espectro gama da rocha cálcio-silicática anfibolítica da fazenda F2.

A Figura 17 apresenta o espectro obtido da amostra de rocha granítica coletada na fazenda F1. Nesse espectro, observou-se contagem elevada para os fotopicos que quantificam a presença do ^{232}Th (338, 911 e 969 keV) e do ^{40}K (1.461 keV). Também foi observado que os fotopicos utilizados para identificação do ^{238}U (63 keV) e do ^{226}Ra (295, 352 e 609 keV) são menos intensos que os observados na Figura 16.

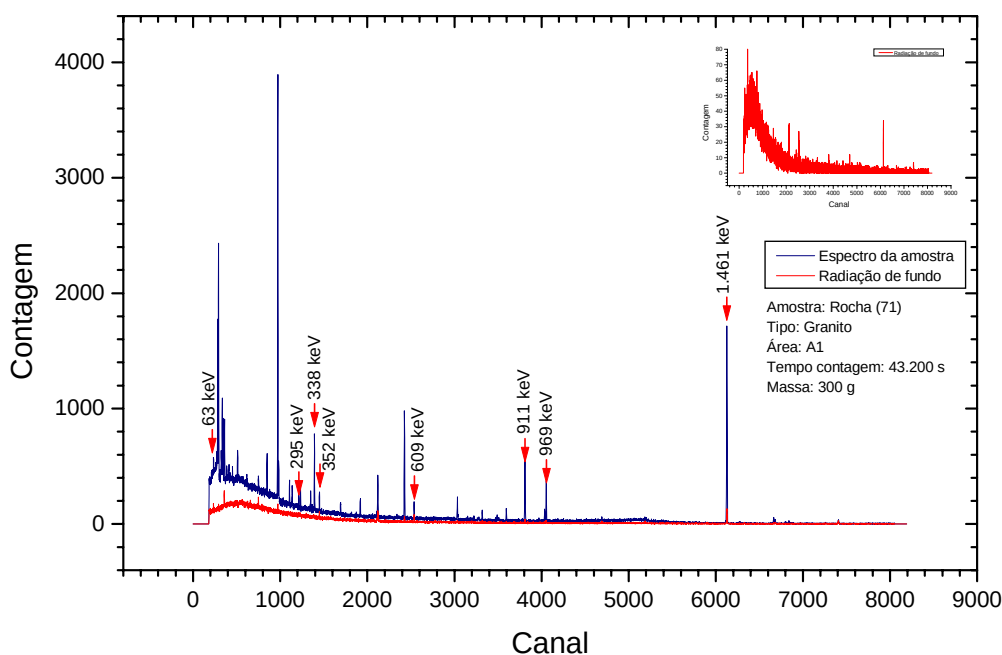


Figura 17. Espectro gama da amostra de rocha granítica da fazenda F1.

A Figura 18 apresenta o espectro gama da amostra de solo coletado próximo à maior ocorrência anômala de urânio, fazenda F2. Os radionuclídeos presentes nesta amostra estão diretamente associados com os radionuclídeos encontrados na rocha cálcio-silicática anfibolítica anômala da Figura 16, ou seja, elevadas concentrações de ^{238}U e ^{226}Ra e baixas concentrações de ^{232}Th e ^{40}K .

O espectro apresentado na Figura 19, amostra do solo adjacente a ocorrência da fazenda F1, mostrou a identificação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e do ^{40}K , com intensos fotopicos para os dois últimos radionuclídeos, que estão praticamente ausentes nas rochas cálcio-

silicáticas anfíbolíticas anômalas em urânio. Por outro lado, como foi visto na Figura 17, apresentam-se no granito grosseiro.

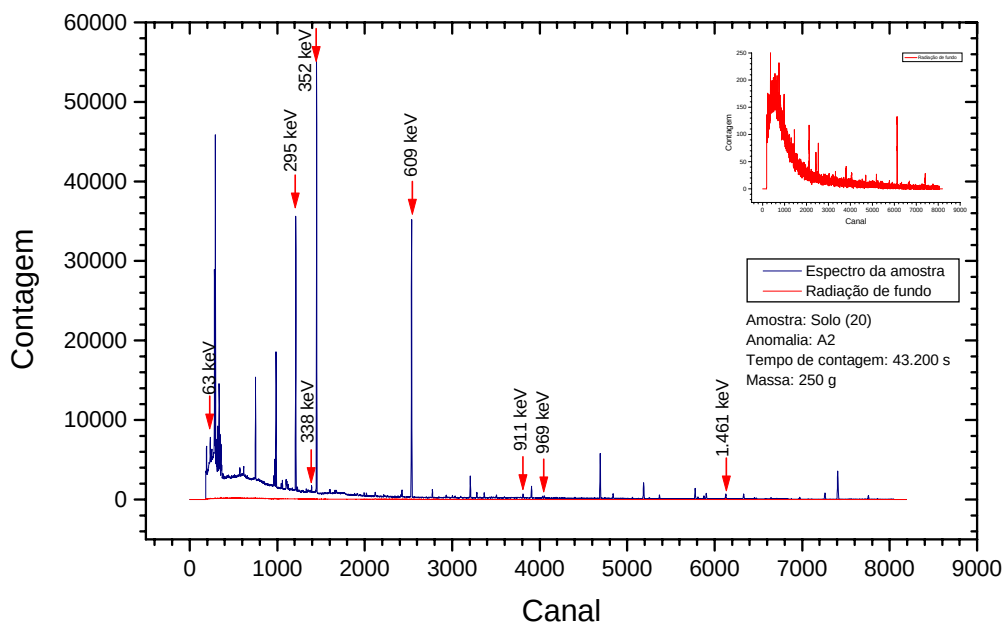


Figura 18. Espectro gama da amostra de solo da fazenda F2.

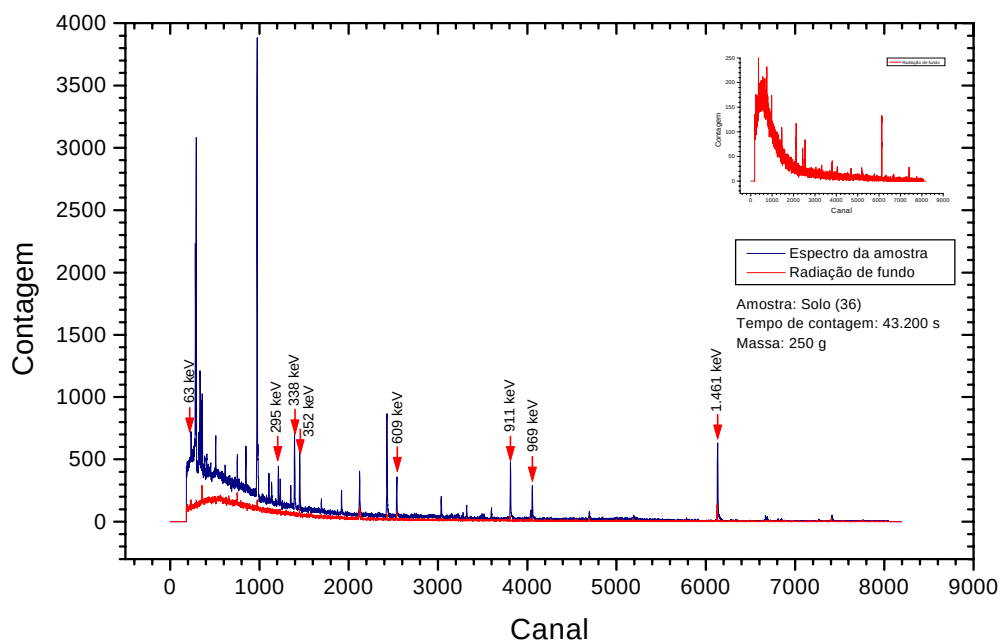


Figura 19. Espectro gama da amostra de solo da fazenda F1.

Os espectros apresentados anteriormente dão uma idéia da disponibilidade dos radionuclídeos estudados, o que caracteriza a priori a existência de outras fontes radioativas, e não apenas, as rochas cálcio-silicáticas, que estão fornecendo ^{232}Th e ^{40}K para o solo. Fazendo um estudo comparativo entre as Figuras 16, 17, 18 e 19, pode-se observar que: (1) a rocha granítica é a principal responsável pela presença dos níveis elevados de ^{232}Th e ^{40}K nos solos das áreas estudadas; e (2) os tipos de rochas existentes nos afloramentos das fazendas F1 e F2 disponibilizam níveis elevados de ^{238}U e ^{226}Ra para os seus respectivos solos adjacentes.

Para confirmar se esse comportamento dos radionuclídeos é predominante ao longo da área de estudo, foram analisadas qualitativa e quantitativamente oitenta e uma amostras, incluindo solo e as rochas encontradas na área estudada. Na quantificação dos radionuclídeos foram calculadas suas atividades específicas, e com base nestas, a estimativa dos teores, das taxas de doses de radiação gama natural absorvidas, a contribuição das séries do ^{238}U , ^{232}Th e do ^{40}K para a taxa de dose de radiação gama natural equivalente efetiva, assim como, a contribuição total da taxa de dose equivalente efetiva anual, considerando para efeito de cálculo, a fonte localizada a 1 m da superfície e uma exposição externa de corpo inteiro. A taxa de dose equivalente efetiva natural total, foi calculada pela Equação 21, considerando as contribuições dos descendentes do ^{232}Th , do ^{238}U e a participação do ^{40}K , utilizados para um fator de ocupação parcial. O Rádio equivalente também foi utilizado como avaliação alternativa para estimar a taxa de dose e foi calculado pela Equação 22, levando-se em consideração as contribuições do ^{226}Ra , ^{232}Th e do ^{40}K .

4.4 Atividades específicas

Os resultados foram tratados estatisticamente, separados, considerando as amostras de solo e de rochas. As atividades do ^{226}Ra e do ^{232}Th foram obtidas pelas médias ponderadas, tendo como parâmetros as atividades específicas calculadas para os diferentes fotopicos e seus desvios padrões médios associados (ver energias utilizadas para o cálculo das atividades do ^{226}Ra e do ^{232}Th , consultando a seção 3.2.9). Para justificar o uso das

médias ponderadas na avaliação das atividades do ^{226}Ra e do ^{232}Th , foi aplicado o teste de hipótese qui-quadrado (χ^2) para as atividades obtidas nos diferentes fotopicos. De acordo com a distribuição do χ^2 , os valores das atividades calculadas para o ^{226}Ra e o ^{232}Th , estão abaixo do valor crítico (ARANGO, 2005). Portanto, as atividades individuais estão bem ajustadas às médias ponderadas, justificando assim, o seu uso.

Das amostras de solo analisadas, a amostra de número 20 (Tabela 11) apresentou atividades específicas para o ^{238}U e o ^{226}Ra muito superiores às das demais amostras de solo. As elevadas concentrações específicas desses radionuclídeos, nessa amostra, são justificadas pois a coleta foi realizada próximo a ocorrência anômala da fazenda F2, área com os maiores níveis de radioatividade. As atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K calculadas para esta amostra foram respectivamente iguais a $832,9 \pm 1,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $4.717,5 \pm 1,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$; $144,9 \pm 0,2 \text{ Bq.kg}^{-1}$ e $699,7 \pm 2,0 \text{ Bq.kg}^{-1}$.

Na Tabela 11 são apresentadas: a identificação das amostras de solo (S), rochas graníticas (RG) e rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas (RCSA), suas coordenadas, data de coleta, pH, e as atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K com seus respectivos desvios padrões médios associados. A Tabela 12 apresenta a estatística descritiva para os resultados obtidos e apresentados na Tabela 11. Os valores das atividades específicas para solo variaram de: menor que 2,8 (LD) a $229,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{238}U ; 9,1 a $62,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{226}Ra ; 33,5 a $448,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$, para o ^{232}Th ; e 298,0 a $2.274,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{40}K . Nas amostras de granito, as atividades do ^{238}U variaram de 4,7 a $51,6 \text{ Bq.kg}^{-1}$; as de ^{226}Ra , menor que 0,6 (LD) a $50,3 \text{ Bq.kg}^{-1}$; as de ^{232}Th , de 6,9 a $1.026,1 \text{ Bq.kg}^{-1}$; e as de ^{40}K , de 36,3 a $1.898,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Nas amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, os valores das atividades específicas variaram de 8.876,1 a $79.092,0 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{238}U ; de 16.897,8 a $144.437,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$, para o ^{226}Ra ; de 57,2 a $1.902,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$, para o ^{232}Th ; e menor que o limite de detecção ($4,7 \text{ Bq.kg}^{-1}$) para o ^{40}K .

Uma tendência mundial é utilizar a média aritmética para expressar a medida mais representativa, muito embora sofra interferências dos valores extremos (ARANGO, 2005). Essa medida, leva em consideração todos os valores do conjunto de dados amostrais, o que caracteriza uma medida mais real da situação em análise, levando-se em consideração na estimativa do cálculo final, todos os valores, incluindo os considerados anômalos. Nos resultados experimentais obtidos, os valores das atividades encontradas para as amostras de

solo, rochas graníticas e rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas variaram muito ao longo da área de estudo. Dessa forma, foi assumido o valor médio aritmético para expressar a medida de tendência central, ou seja, uma medida mais representativa do diagnóstico da área, levando-se também em consideração os valores intervalares e suas amplitudes.

Para justificar o uso dessa média, foi considerado que os fenômenos radioativos naturais, em cuja análise intervém o método estatístico, bem como os dados estatísticos a eles referentes, caracterizam-se tanto pela sua semelhança, quanto pela sua variabilidade. Desde modo, o cálculo de uma determinada medida de tendência central só se justifica em razão da variabilidade presente no meio ambiente. Portanto, caso a variação seja grande, como aconteceu na análise estatísticas dos valores encontrados para o ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nesse trabalho, apresentados na Tabela 11, a utilização da média aritmética pode fornecer uma real situação da distribuição desses radionuclídeos no meio ambiente, mostrando a existência de valores anormais.

Em estudos radioecológicos não existem procedimentos estatísticos utilizados para reduzir os efeitos dos valores anômalos sobre a média aritmética. Devido às flutuações estatísticas causadas pelos valores “outliers” (anômalos), os radioecologistas utilizam a média geométrica ou a mediana como valor mais representativo do conjunto de dados obtidos da amostra. No caso da média geométrica, utilizam-se os logaritmos dos valores obtidos da amostra para se obter uma curva simétrica. Neste caso, a média geométrica revela-se mais adequada que a média aritmética (TOLEDO; OVALLE, 1983).

A mediana não é afetada pelos valores anômalos, sendo a medida de tendência central mais utilizada em análises estatísticas de dados discrepantes (TOLEDO; OVALLE, 1983). Portanto, o uso dessas médias acaba por interferir de forma significativa na influência dos valores anômalos do conjunto de dados, o que não justifica utilizá-las neste estudo, onde foram observados valores extremamente diferenciados para o ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas diferentes amostras analisadas.

Tabela 11. Identificação, localização, medidas de pH e das atividades específicas para as amostras de solo e rochas.

AMOSTRA		COORDENADAS		COLETA	pH	ATIVIDADE (Bq.kg ⁻¹)			
CÓD	TIPO	S	W			U-238	Ra-226	Th-232	K-40
F1	RCSA	8°37.459'	36°55.144'	5/2006	8,50	11.472,5 ± 1,6	20.923,1 ± 0,5	179,7 ± 2,3	
					8,90	8.876,1 ± 1,6	16.897,8 ± 0,5	57,2 ± 1,1	
					8,63	79.092,0 ± 71,3	144.437,9 ± 64,8	1.902,9 ± 7,2	< 4,7
F2	RCSA	8°37.693'	36°55.220'	5/2006	8,30	61.589,2 ± 2,4	98.770,5 ± 1,1	95,3 ± 1,0	
					8,11	34.115,6 ± 1,6	66.121,0 ± 0,9	192,9 ± 1,2	
					8,67	31,0 ± 1,2	5,5 ± 0,1	51,9 ± 0,1	1.321,5 ± 1,7
01	RG	8°37.893'	36°55.535'	11/2006	8,67	31,0 ± 1,2	5,5 ± 0,1	51,9 ± 0,1	1.321,5 ± 1,7
02	RCSA	8°37.885'	36°55.563'	11/2006	8,88	29,4 ± 0,4	50,3 ± 0,1	31,5 ± 0,1	103,0 ± 1,0
03	S	8°37.885'	36°55.573'	11/2006	7,36	16,6 ± 0,4	12,8 ± 0,1	38,7 ± 0,1	298,0 ± 1,3
04	S	8°37.876'	36°55.611'	11/2006	8,06	15,5 ± 0,4	9,9 ± 0,1	45,4 ± 0,1	369,7 ± 1,3
05	S	8°37.899'	36°55.616'	11/2006	7,12	23,3 ± 0,5	14,2 ± 0,1	84,1 ± 0,1	396,0 ± 1,3
06	S	8°37.872'	36°55.466'	11/2006	7,60	6,8 ± 0,4	11,9 ± 0,1	76,4 ± 0,1	479,9 ± 1,4
07	S	8°37.921'	36°55.461'	11/2006	6,99	18,3 ± 0,4	12,9 ± 0,1	70,0 ± 0,1	380,2 ± 1,4
08	S	8°37.932'	36°55.396'	11/2006	6,54	117,6 ± 2,2	10,3 ± 0,1	87,8 ± 0,1	620,5 ± 1,6
09	S	8°37.831'	36°55.497'	11/2006	8,24	< 2,8	9,3 ± 0,1	65,3 ± 0,1	760,9 ± 3,1
10	S	8°37.838'	36°55.559'	11/2006	7,93	229,8 ± 14,9	15,2 ± 0,2	78,0 ± 0,1	601,9 ± 2,6
11	S	8°37.783'	36°55.570'	11/2006	7,72	20,2 ± 0,5	13,8 ± 0,1	82,0 ± 0,2	415,7 ± 1,4
12	S	8°37.754'	36°55.623'	11/2006	6,95	12,7 ± 0,6	15,7 ± 0,3	89,8 ± 0,1	923,6 ± 2,8
13	S	8°37.807'	36°55.304'	11/2006	6,49	66,7 ± 1,6	34,0 ± 0,2	338,5 ± 0,1	1.401,4 ± 1,7
14	S	8°37.773'	36°55.313'	11/2006	6,26	46,1 ± 0,7	30,2 ± 0,2	268,3 ± 0,1	1.628,4 ± 8,5
15	S	8°37.778'	36°55.250'	11/2006	6,76	33,8 ± 0,8	15,4 ± 0,2	66,9 ± 0,1	708,7 ± 1,9
16	S	8°37.692'	36°55.540'	11/2006	6,68	82,0 ± 0,7	62,1 ± 0,2	194,2 ± 0,1	2.274,4 ± 8,5
17	RG	8°37.689'	36°55.299'	11/2006	8,28	4,7 ± 0,3	< 0,6	6,9 ± 0,1	342,9 ± 1,0
18	S	8°37.732'	36°55.233'	11/2006	7,19	23,4 ± 0,7	9,1 ± 0,2	33,5 ± 0,1	553,6 ± 1,5
19	S	8°37.663'	36°55.325'	11/2006	7,15	25,0 ± 0,7	44,2 ± 0,1	112,2 ± 0,1	750,6 ± 1,5
20	S	8°37.693'	36°55.217'	5/2004	7,55	832,9 ± 1,3	4.717,5 ± 1,4	144,9 ± 0,2	699,7 ± 2,0

continuação na página seguinte

continuação da Tabela 11

21	S	8°37.717'	36°55.177'	11/2006	6,03	43,2 ± 0,7	20,7 ± 0,2	150,2 ± 0,1	1.307,9 ± 3,1
22	S	8°37.726'	36°55.206'	11/2006	6,63	16,4 ± 0,7	12,7 ± 0,1	50,1 ± 0,2	405,6 ± 1,9
23	S	8°37.709'	36°55.244'	11/2006	6,94	16,5 ± 0,4	12,7 ± 0,1	47,6 ± 0,1	321,1 ± 1,3
24	S	8°37.650'	36°55.230'	11/2006	7,56	38,5 ± 0,9	27,1 ± 0,2	133,4 ± 0,1	578,5 ± 1,5
25	S	8°37.607'	36°55.211'	11/2006	8,63	29,2 ± 0,7	17,1 ± 0,2	87,7 ± 0,1	469,6 ± 1,5
26	S	8°37.644'	36°55.162'	11/2006	6,52	25,8 ± 0,7	34,2 ± 0,1	110,0 ± 0,1	499,6 ± 1,4
27	S	8°37.618'	36°55.279'	11/2006	7,26	15,1 ± 0,6	14,5 ± 0,2	61,1 ± 0,1	964,8 ± 6,6
28	S	8°37.591'	36°55.317'	11/2006	7,81	46,1 ± 1,1	46,7 ± 0,1	162,9 ± 0,2	1.091,5 ± 1,8
29	S	8°37.535'	36°55.302'	11/2006	7,54	55,7 ± 0,8	53,3 ± 0,1	192,3 ± 0,2	1.075,3 ± 1,6
30	S	8°37.478'	36°55.336'	11/2006	7,96	58,5 ± 0,9	49,3 ± 0,2	191,8 ± 0,1	1.259,1 ± 2,5
31	S	8°37.481'	36°55.286'	11/2006	7,49	52,4 ± 0,7	42,6 ± 0,2	146,7 ± 0,1	1.575,1 ± 4,0
32	S	8°37.512'	36°55.238'	11/2006	7,19	33,2 ± 1,1	13,0 ± 0,2	71,5 ± 0,1	1.032,8 ± 5,0
33	S	8°37.584'	36°55.221'	11/2006	8,07	38,8 ± 0,8	20,2 ± 0,2	101,6 ± 0,1	642,5 ± 1,4
34	S	8°37.554'	36°55.259'	11/2006	7,08	11,3 ± 0,6	15,2 ± 0,2	93,1 ± 0,1	855,6 ± 2,7
35	S	8°37.376'	36°55.160'	11/2006	6,60	45,3 ± 0,8	29,5 ± 0,2	169,1 ± 0,1	1.095,1 ± 4,8
36	S	8°37.302'	36°55.149'	11/2006	7,53	43,7 ± 0,8	33,0 ± 0,2	137,6 ± 0,1	1.187,2 ± 4,7
37	S	8°37.406'	36°55.140'	5/ 2004	7,74	32,0 ± 0,9	32,7 ± 0,2	216,2 ± 0,1	1.034,0 ± 1,5
38	S	8°37.432'	36°55.090'	5/ 2004	8,17	24,9 ± 1,1	32,1 ± 0,2	233,4 ± 0,1	1.129,2 ± 1,6
39	S	8°37.449'	36°55.172'	5/ 2004	7,83	81,4 ± 2,0	15,6 ± 0,1	99,7 ± 0,1	460,8 ± 1,0
40	S	8°37.465'	36°55.148'	5/ 2004	8,22	29,4 ± 0,9	34,0 ± 0,2	115,7 ± 0,1	584,3 ± 1,3
41	S	8°37.479'	36°55.119'	5/ 2004	7,23	35,7 ± 0,8	26,4 ± 0,2	168,5 ± 0,1	1.126,3 ± 1,5
42	S	8°37.492'	36°55.206'	6/2004	7,17	30,3 ± 0,8	20,1 ± 0,1	174,0 ± 0,1	774,5 ± 1,4
43	S	8°37.520'	36°55.161'	6/2004	6,24	44,1 ± 0,7	43,9 ± 0,2	103,6 ± 0,1	566,0 ± 1,3
44	S	8°37.360'	36°55.035'	10/2003	7,24	57,9 ± 0,8	28,2 ± 0,2	181,9 ± 0,1	919,6 ± 1,5
45	S	8°37.335'	36°55.070'	5/.2004	7,84	38,9 ± 0,7	30,1 ± 0,2	204,8 ± 0,1	967,1 ± 1,5
46	S	8°37.401'	36°55.083'	5/.2004	7,33	47,2 ± 0,8	29,8 ± 0,2	218,2 ± 0,1	1.080,2 ± 1,6
47	S	8°37.376'	36°55.117'	5/.2004	7,20	51,4 ± 0,8	30,4 ± 0,2	204,3 ± 0,1	1.172,3 ± 1,6

continuação na página seguinte

continuação da Tabela 11

48	RG	8°37.448'	36°55.129'	11/2006	8,52	51,6 ± 0,9	33,0 ± 0,1	1.026,1 ± 0,3	1.605,6 ± 2,9
49	S	8°37.234'	36°55.074'	11/2006	7,84	18,1 ± 0,5	28,4 ± 0,1	242,7 ± 0,1	740,6 ± 1,7
50	S	8°37.192'	36°55.131'	11/2006	7,88	25,0 ± 0,5	27,3 ± 0,1	178,0 ± 0,6	948,9 ± 1,6
51	S	8°37.171'	36°55.078'	11/2006	7,82	38,6 ± 0,5	29,7 ± 0,1	337,9 ± 0,2	711,7 ± 1,5
52	S	8°37.198'	36°55.049'	11/2006	7,43	36,2 ± 0,6	39,3 ± 0,1	448,1 ± 0,2	1.018,8 ± 1,6
53	S	8°37.456'	36°54.983'	11/2006	5,26	33,1 ± 0,7	24,6 ± 0,2	141,9 ± 0,1	712,2 ± 1,6
54	S	8°37.495'	36°54.990'	11/2006	8,73	38,7 ± 0,7	25,4 ± 0,2	168,1 ± 0,1	946,2 ± 1,7
55	S	8°37.522'	36°55.052'	11/2006	5,51	57,4 ± 0,9	24,9 ± 0,1	179,0 ± 0,1	917,6 ± 1,5
56	RG	8°37.579'	36°55.089'	11/2006	7,26	32,6 ± 1,1	15,6 ± 0,2	124,1 ± 0,1	1.198,0 ± 5,9
57	S	8°37.619'	36°55.043'	11/2006	6,72	23,6 ± 0,7	14,6 ± 0,1	106,5 ± 0,1	535,0 ± 1,4
58	S	8°37.623'	36°54.956'	11/2006	4,80	44,7 ± 0,8	31,3 ± 0,2	209,8 ± 0,1	884,4 ± 1,6
59	RG	8°37.546'	36°55.004'	11/2006	7,63	27,9 ± 0,7	24,5 ± 0,2	178,7 ± 0,1	866,2 ± 2,8
60	S	8°37.211'	36°55.058'	11/2006	7,57	39,6 ± 0,6	33,6 ± 0,1	353,1 ± 0,2	916,3 ± 1,5
61	S	8°37.161'	36°55.062'	11/2006	6,68	54,3 ± 1,4	20,1 ± 0,1	182,2 ± 0,2	590,3 ± 1,4
62	RG	8°37.151'	36°55.056'	11/2006	7,12	33,0 ± 0,7	32,6 ± 0,1	548,9 ± 0,2	1.510,9 ± 1,7
63	S	8°37.389'	36°54.988'	11/2006	5,53	48,0 ± 1,5	29,1 ± 0,2	218,0 ± 0,1	1.057,3 ± 1,7
64	S	8°37.347'	36°54.958'	11/2006	6,16	29,4 ± 0,6	18,8 ± 0,2	133,2 ± 0,1	1.300,7 ± 6,1
65	S	8°37.294'	36°55.012'	11/2006	6,61	52,5 ± 1,0	27,6 ± 0,2	209,7 ± 0,1	1.201,8 ± 2,3
66	S	8°37.260'	36°55.011'	11/2006	8,19	53,2 ± 0,8	26,3 ± 0,2	199,8 ± 0,1	1.064,8 ± 1,5
67	S	8°37.199'	36°54.999'	11/2006	7,47	39,4 ± 1,0	32,9 ± 0,2	219,4 ± 0,1	1.172,3 ± 1,8
68	S	8°36.806'	36°54.527'	11/2006	7,44	32,9 ± 1,0	28,7 ± 0,1	175,4 ± 0,1	986,0 ± 1,6
69	S	8°36.797'	36°54.462'	11/2006	7,07	48,9 ± 0,8	44,3 ± 0,2	303,3 ± 1,1	1.304,6 ± 1,7
70	S	8°36.768'	36°54.428'	11/2006	6,42	24,4 ± 0,6	23,4 ± 0,1	224,4 ± 0,2	482,0 ± 1,4
71	RG	8°37.459'	36°55.144'	11/2006	7,96	19,9 ± 0,6	8,4 ± 0,1	126,4 ± 0,1	1.898,9 ± 1,6
72	RCSA	8°37.885'	36°55.363'	11/2006	8,31	16,2 ± 0,5	19,8 ± 0,1	23,5 ± 0,1	432,0 ± 1,9
73	RG	8°37.697'	36°55.225'	11/2006	8,71	18,9 ± 0,8	5,8 ± 0,1	35,3 ± 0,2	729,2 ± 2,4
74	RG	8°37.461'	36°55.146'	11/2006	8,50	9,4 ± 0,6	4,6 ± 0,1	24,3 ± 0,1	318,9 ± 1,8
75	R	8°37.377'	36°55.118'	11/2006	9,52	28,3 ± 0,4	32,1 ± 0,1	22,6 ± 0,1	36,3 ± 0,9
76	R	8°37.696'	36°55.224'	11/2006	6,70	19,4 ± 0,4	37,4 ± 0,1	23,9 ± 0,1	117,8 ± 1,0

F: Fazenda; RG: Rocha granítica; RCSA: Rocha cálcio-silicática anfíbolítica; S: Solo.

Tabela 12. Resultados da estatística descritiva e teste de normalidade para as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

RESULTADOS ESTATÍSTICOS	ATIVIDADES (Bq.kg^{-1})											
	SOLO				ROCHA GRANÍTICA				ROCHA CÁLCIO-SILICÁTICA			
	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Mínimo	< 2,8	9,1	33,5	298,0	4,7	< 0,6	6,9	36,3	8.876,1	16.897,8	57,2	
Máximo	229,8	62,1	448,1	2.274,4	51,6	50,3	1.026,1	1.898,9	79.092,0	144.437,9	1.902,9	
Amplitude	229,8	53,0	414,6	1.976,4	46,9	50,3	1.019,2	1.862,6	70.215,9	127.540,1	1.845,7	
Nº. de amostras	62	62	62	62	13	13	13	13	5	5	5	
Média	40,6	26,1	157,9	874,7	24,8	20,7	171,1	806,2	39.029,1	69.430,1	485,6	
Mediana	37,4	26,8	156,6	917,0	27,9	19,8	35,3	729,2	34.115,6	66.121,0	179,7	
Moda	38,0	28,5	84,8	932,5	25,4	6,3	108,8	269,1	20.578,8	38.154,5	287,9	
Média geométrica	34,7	23,5	135,7	799,1	21,5	17,1	61,8	490,8	27.905,8	50.654,8	204,7	< 4,7
Desvio padrão	31,3	11,9	85,1	370,1	12,0	15,6	295,0	639,8	30.849,3	53.876,1	794,3	
Desvio geométrico	1,8	1,6	1,8	1,6	1,9	2,3	4,1	3,4	2,7	2,6	3,8	
Erro padrão	4,0	1,5	10,8	47,0	3,3	4,3	81,8	177,4	13.796,2	24.094,1	355,2	
Coef. variação (%)	77,1	45,6	53,9	42,3	48,4	75,4	172,4	79,4	79,0	77,6	163,6	
Assimetria	0,31	-0,18	0,05	-0,34	-0,78	0,17	1,38	0,36	0,48	0,18	1,16	
Curtose	21,9	0,3	1,3	2,0	1,1	-0,9	6,2	-1,4	-2,2	-1,2	4,9	

A Figura 20 apresenta as médias aritméticas, consideradas no presente estudo como sendo mais representativas para as atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras de solo, rochas graníticas e rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas. Devido as grandes discrepâncias encontradas para os diferentes tipos de amostras, os resultados foram expressos na escala logarítmica decimal.

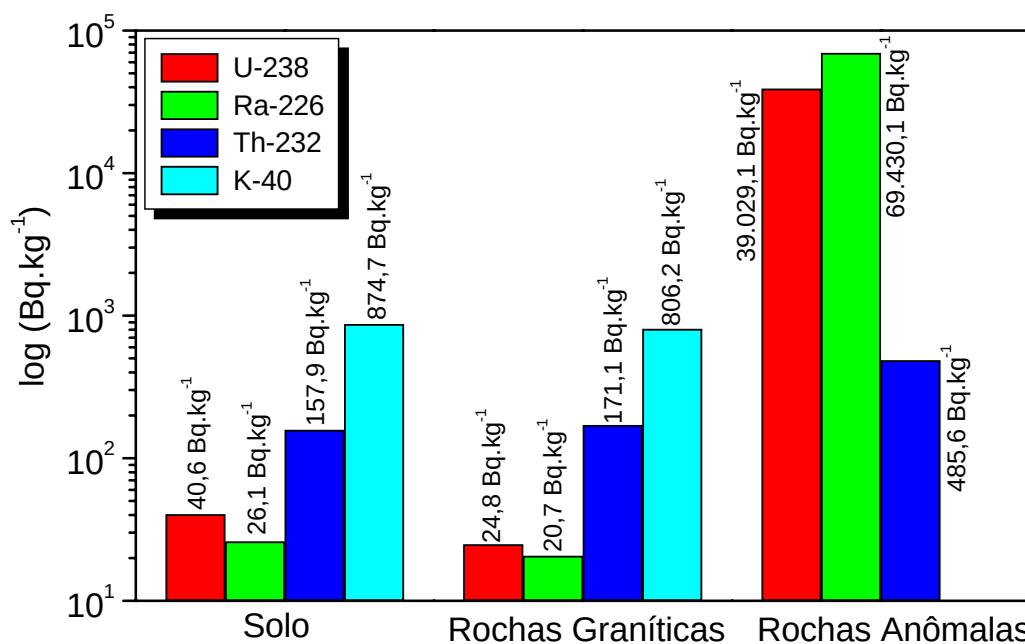


Figura 20. Média das atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em rochas e no solo da área de estudo.

De acordo com a Figura 20, as maiores atividades médias do ^{238}U e do ^{226}Ra foram observadas para as rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas. Esse comportamento já era esperado para esses dois radionuclídeos, devido a anomalia descrita anteriormente. Para as amostras de solo, o urânio e o rádio apresentaram-se, em média, com maiores concentrações quando comparados aos resultados encontrados nas rochas graníticas. O valor médio calculado para o ^{232}Th , foi obtido, em maior concentração nas rochas anômalas em urânio, porém, segundo o teste ANOVA sugerido por Vieira (2006), suas concentrações específicas em solo e rochas graníticas são praticamente iguais. No solo e nos granitos foram encontradas as maiores atividades de ^{40}K , médias praticamente iguais, enquanto que, nas rochas anômalas em urânio o ^{40}K não foi detectado (menor que 4,7 Bq.kg⁻¹).

4.4.1 Amostras de solo

A Figura 21 mostra com mais detalhes as atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K determinadas para as amostras de solo coletadas em toda extensão da área de estudo (ver também a Tabela 11).

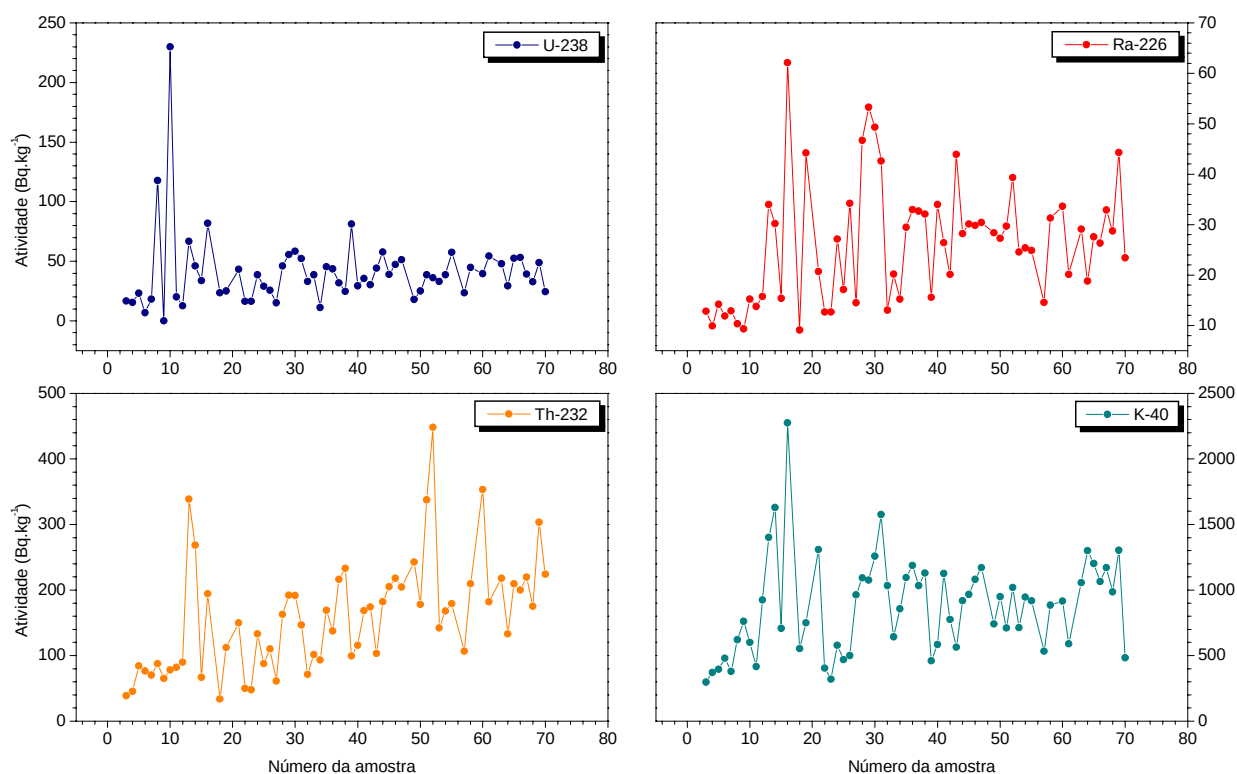


Figura 21. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em solo.

De acordo com Singh et al. (1997), as concentrações de elementos químicos em locais tipicamente anômalos podem variar desde o “background” até valores extremamente elevados. Isto provavelmente explica a grande variação dos resultados apresentados nesse trabalho.

Conforme mostrado na Figura 22, observa-se que em solo, as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K apresentaram alguma assimetria, o que justifica uma distribuição mais homogênea desses radionuclídeos ao longo do solo. Isso pode ser constatado com base nas

diferenças dos valores obtidos para a média aritmética, a mediana, a moda e os cálculos dos coeficientes de assimetria (ver Tabela 12). De acordo com o teste de Kolmogorov-Smirnov, os valores das concentrações desses radionuclídeos no solo tenderam para uma distribuição de probabilidade normal. Essa figura apresenta também a curva de Gauss para normalidade e seu ajuste, possibilitando observar assimetrias em todos os casos.

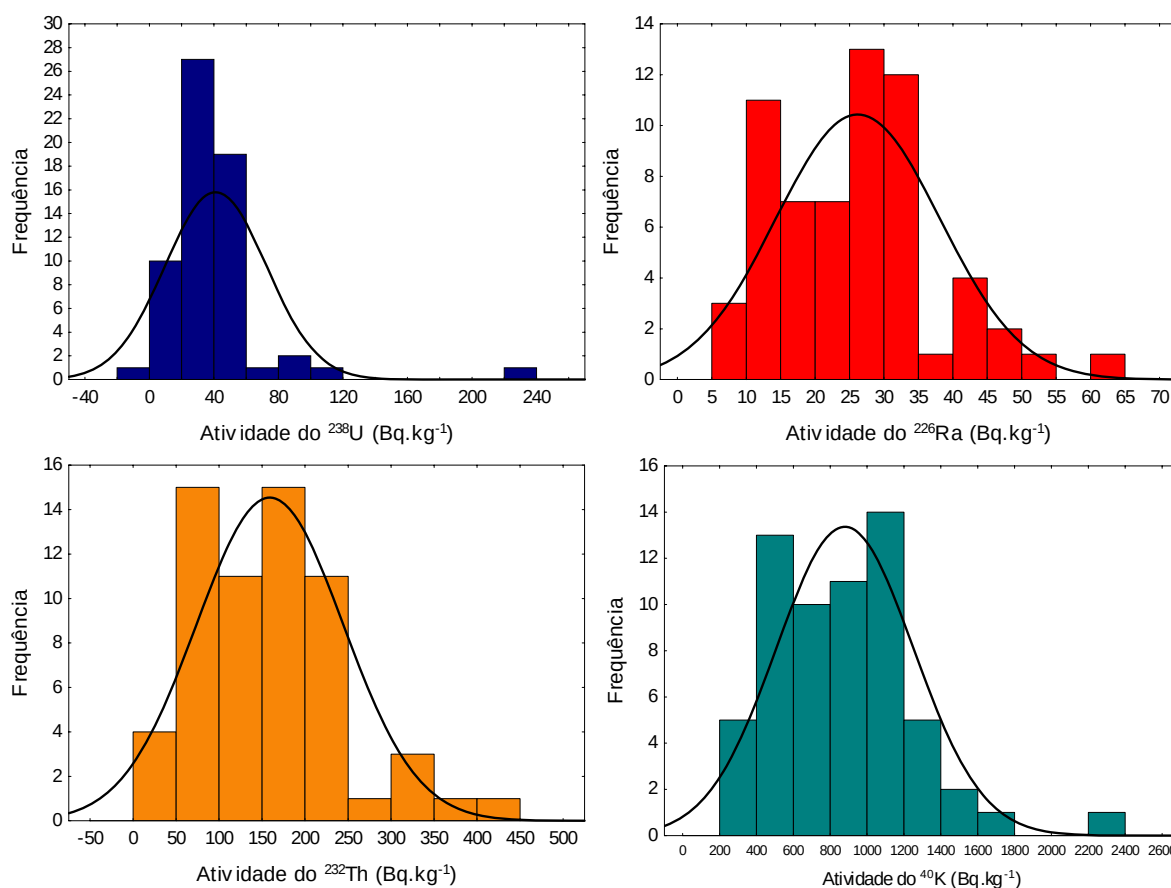


Figura 22. Distribuição de freqüências para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em solo da área de estudo.

O valor da curtose para todos os radionuclídeos estudados em solo apresentaram-se superiores a 0,263 (parâmetro de normalidade). Desta forma, estes radionuclídeos apresentam curvas que mostram uma distribuição de freqüências mais aberta que a normal, ou mais achatada na sua parte superior.

A assimetria da distribuição de freqüências foi analisada, mais precisamente, pelo coeficiente de assimetria de Pearson (ver Tabela 12). Para as atividades específicas do ^{238}U observa-se uma assimetria moderada positiva ou a direita (CRESPO, 1985) e para os resultados obtidos para o ^{232}Th , verificou-se uma assimetria fraca à direita. No caso do ^{226}Ra e do ^{40}K , foram observadas assimetrias moderadas a esquerda.

A Figura 23 apresenta o diagrama de caixas para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K e o comportamento do valor médio, erro padrão, desvio padrão e os valores extremos para cada radionuclídeo. Observando-se os desvios associados as médias, constata-se uma maior representividade do ^{226}Ra , que mostra valores menos discrepantes em relação aos demais radionuclídeos, enquanto que para o ^{40}K observa-se menor representatividade do valor médio com maior desvio associado.

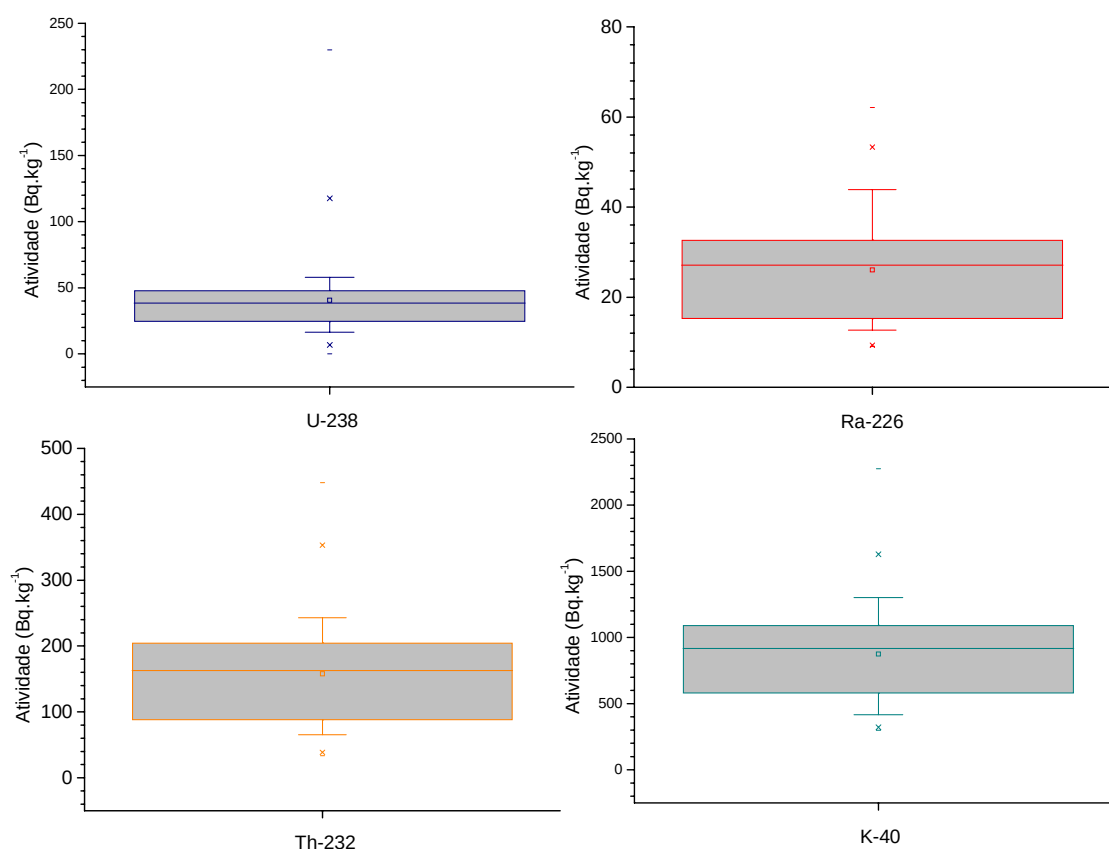


Figura 23. Diagrama de caixas dos radionuclídeos nas amostras de solo da área de estudo.

As Figuras 24, 25 e 26 apresentam as distribuições das curvas de isoatividades (isoradas ou isolinhas de atividades) com base nas amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas anômalas (a) e nas amostras de solo (b) para ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th , respectivamente. A Figura 27, mostra a distribuição das isoatividades do ^{40}K no solo. As Figuras 24a, 25a e 26a, quadrantes superiores, apresentam o comportamento das atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th nos afloramentos das rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas. Partindo destes afloramentos, onde as maiores concentrações específicas foram obtidas para o ^{238}U e o ^{226}Ra , sudeste da área de estudo, com resultados intervalares de $70.216 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{238}U e de $127.540 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{226}Ra , observa-se pelas Figuras 24b, 25b, 26b e 27 a distribuição desses radionuclídeos no solo. Analisando essas figuras, constata-se que, as concentrações mais elevadas de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de solo encontram-se em torno das rochas anômalas, sudeste dos quadrantes inferiores, com atividades específicas máximas que chegam numa escala superior a 200 Bq.kg^{-1} de ^{238}U e maior que 60 Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra . Por outro lado, as atividades obtidas para o ^{232}Th e o ^{40}K , principalmente este último, estão distribuídas com valores bem superiores aos obtidos para o urânio e seu descendente, como mostrado pelas Figuras 26b e 27.

A Figura 28 mostra os diagramas de dispersão para os radionuclídeos analisados: (1) ^{238}U - ^{226}Ra , (2) ^{238}U - ^{232}Th , (3) ^{238}U - ^{40}K , (4) ^{226}Ra - ^{232}Th , (5) ^{226}Ra - ^{40}K e (6) ^{232}Th - ^{40}K , nas amostras de solo, onde foi realizado um estudo da correlação entre eles. Para uma melhor visualização dessas correlações, a Tabela 13 apresenta a estatística descritiva que mostra os coeficientes de correlação para a sequência estudada. Pelo valor do coeficiente de correlação de Pearson (r), verifica-se até que ponto as duas variáveis (x e y) são independentes ou covariantes. De acordo com os dados da Figura 28, os coeficientes de correlação e os valores obtidos para p, apresentados na Tabela 13, não houve correlação significativa entre as concentrações específicas calculadas e apresentadas nos diagramas de dispersão do (1) ^{238}U - ^{226}Ra ($r = 0,17$ e $p = 0,19$), (2) ^{238}U - ^{232}Th ($r = 0,20$ e $p = 0,38$) e (3) ^{238}U - ^{40}K ($r = 0,20$ e $p = 0,12$). Para os radionuclídeos correlacionados nos diagramas (4) ^{226}Ra - ^{232}Th ($r = 0,60$ e $p < 0,0001$), (5) ^{226}Ra - ^{40}K ($r = 0,65$ e $p < 0,0001$) e ^{232}Th - ^{40}K ($r = 0,52$ e $p < 0,0001$) foram identificadas correlações significativas.

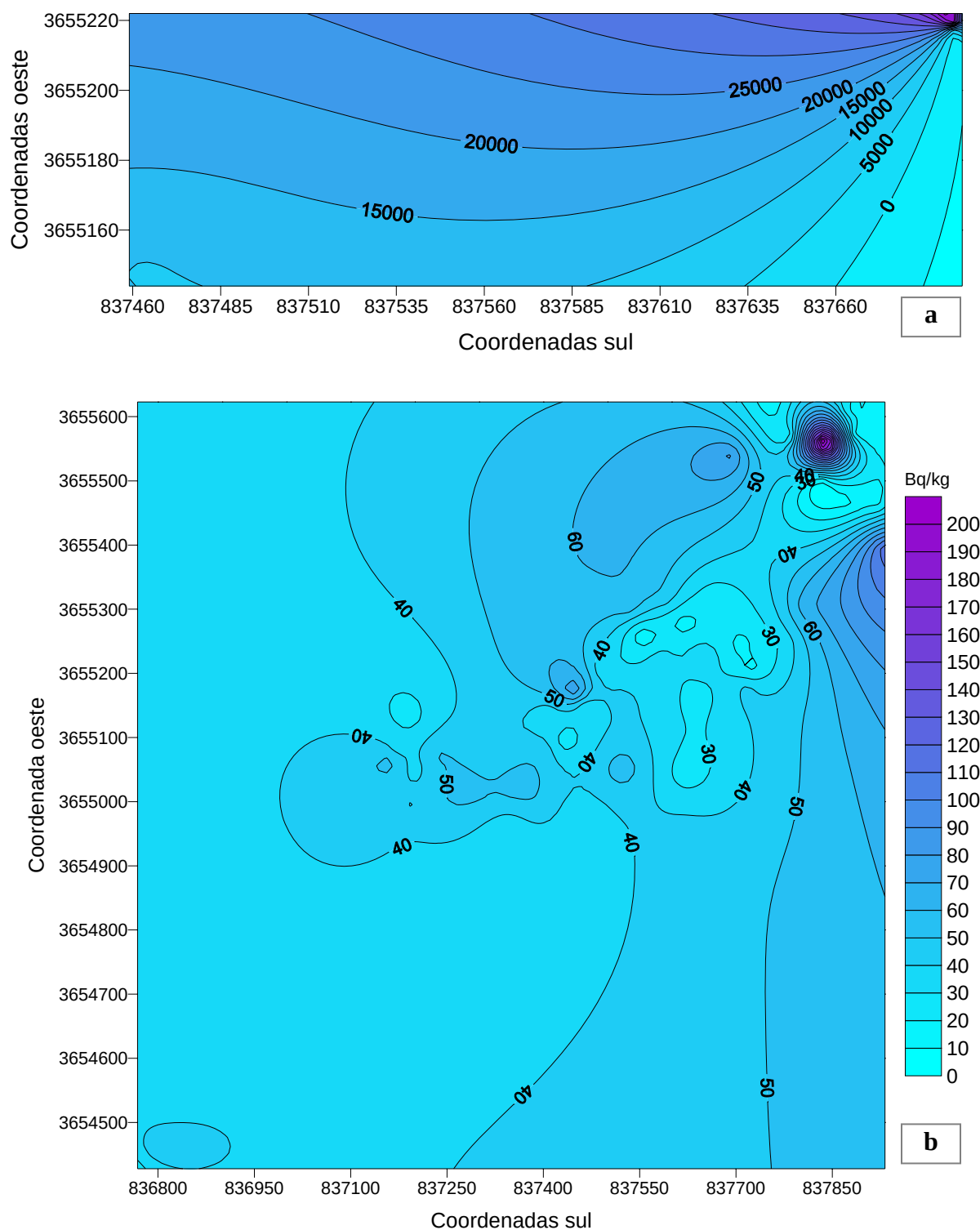


Figura 24. Isoradas para ^{238}U . a: em rochas anômalas e b: em solo na área estudada.

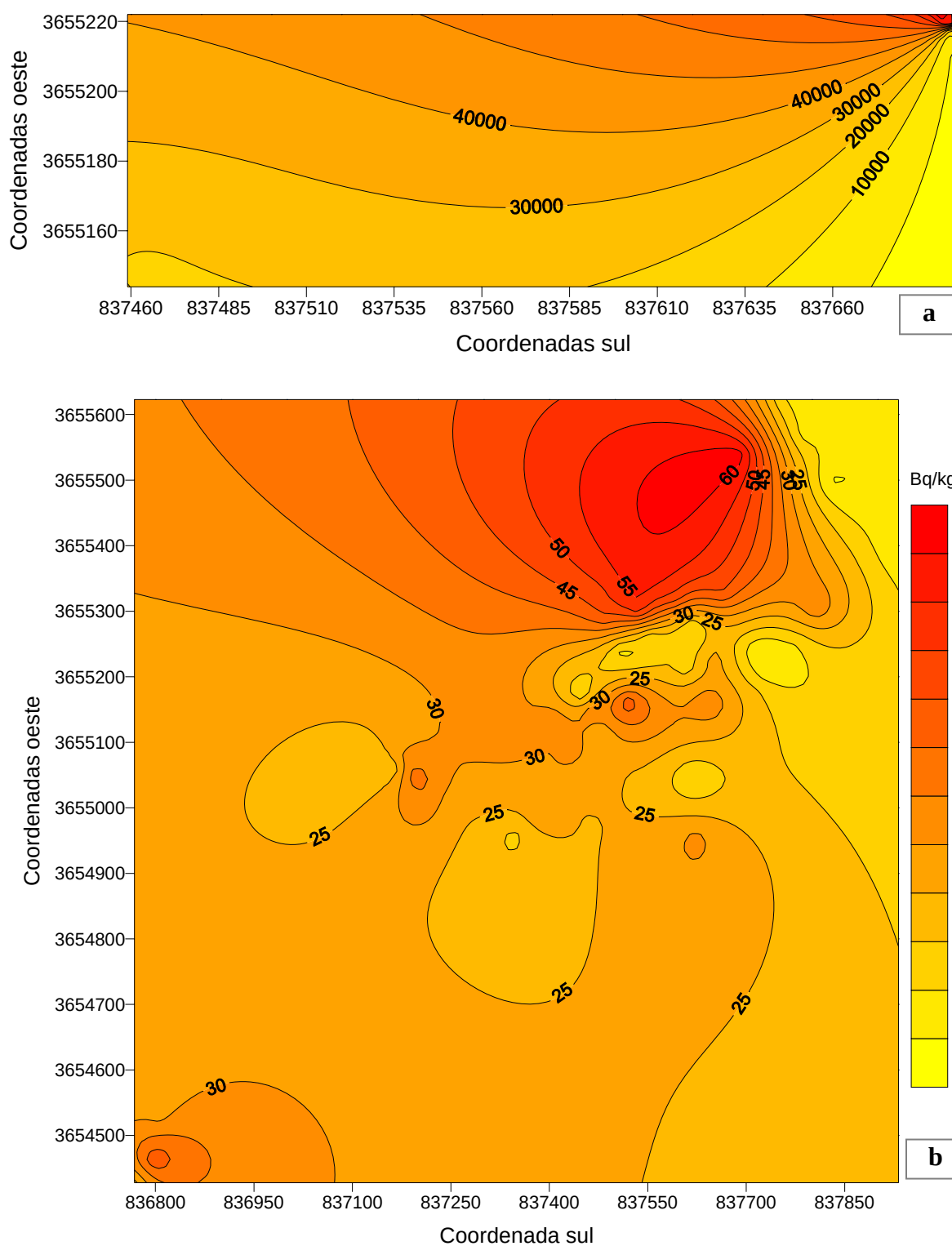


Figura 25. Isoradas para ^{226}Ra . a: em rochas anômalas e b: em solo na área estudada.

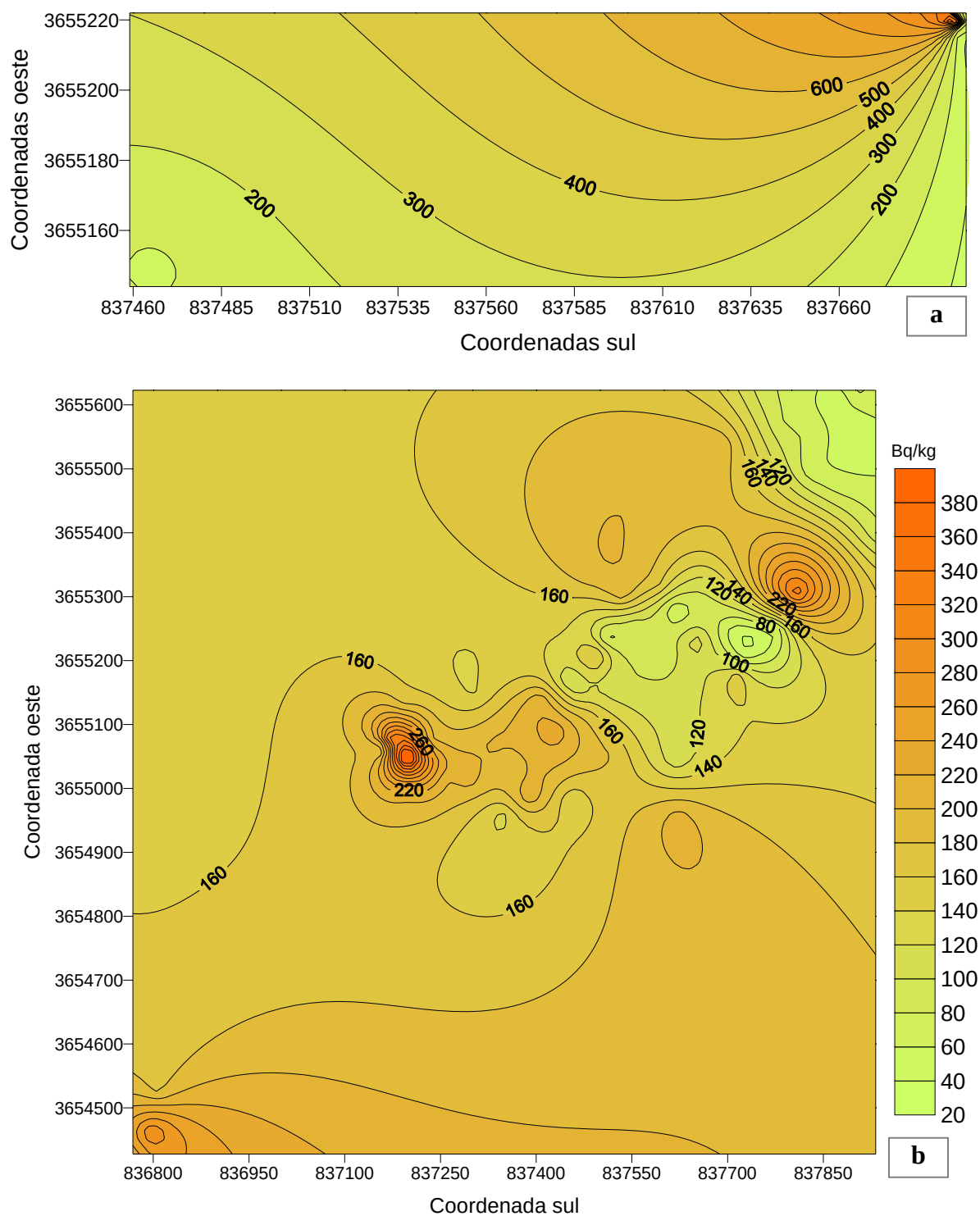


Figura 26. Isoradas para ^{232}Th . a: em rochas anômalas e b: em solo na área estudada.

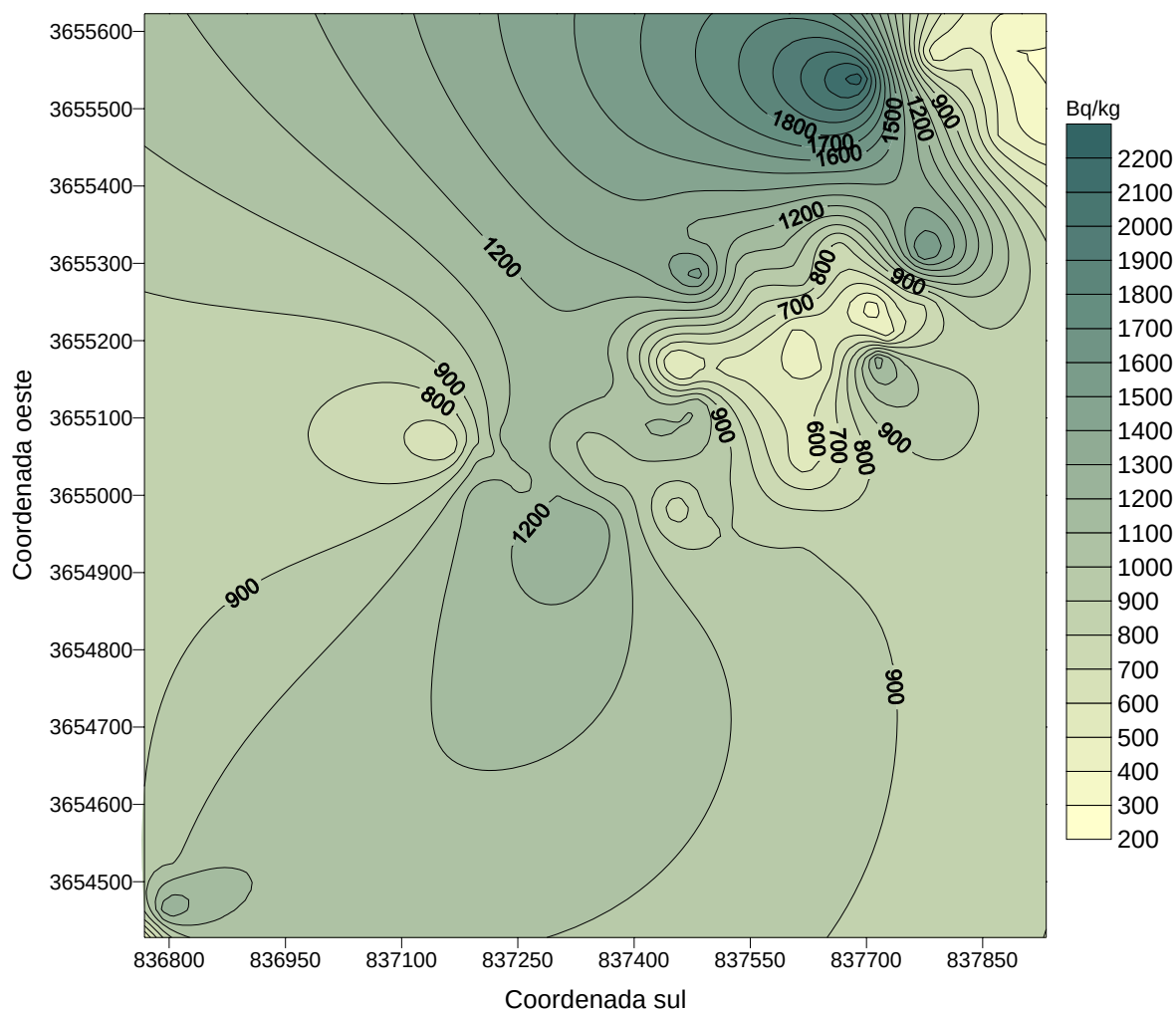


Figura 27. Isoradas para ^{40}K em solo na área estudada.

Para certificar melhor a correlação dos radionuclídeos estudados, foi aplicado o teste estatístico de análise de variância (ANOVA). Um teste F de Levene pode ser feito para testar a hipótese nula de igualdade de variâncias (VIEIRA, 2006). Um valor pequeno para p indica que a ANOVA não é apropriada como um método de análise, fornecendo evidências de que as variâncias diferem significativamente. A análise para a correlação entre ^{238}U - ^{226}Ra mostrou diferenças significantes entre as variâncias ($F = 11,72$ e $p = 8,41\text{E-}4$), praticamente nenhuma correlação observada (ver apêndice A). Para um nível de significância de 95% este teste mostrou que para esses radionuclídeos as médias são

significativamente diferentes, constatando a hipótese testada pela análise de dispersão apresentada na Figura 28 e Tabela 13.

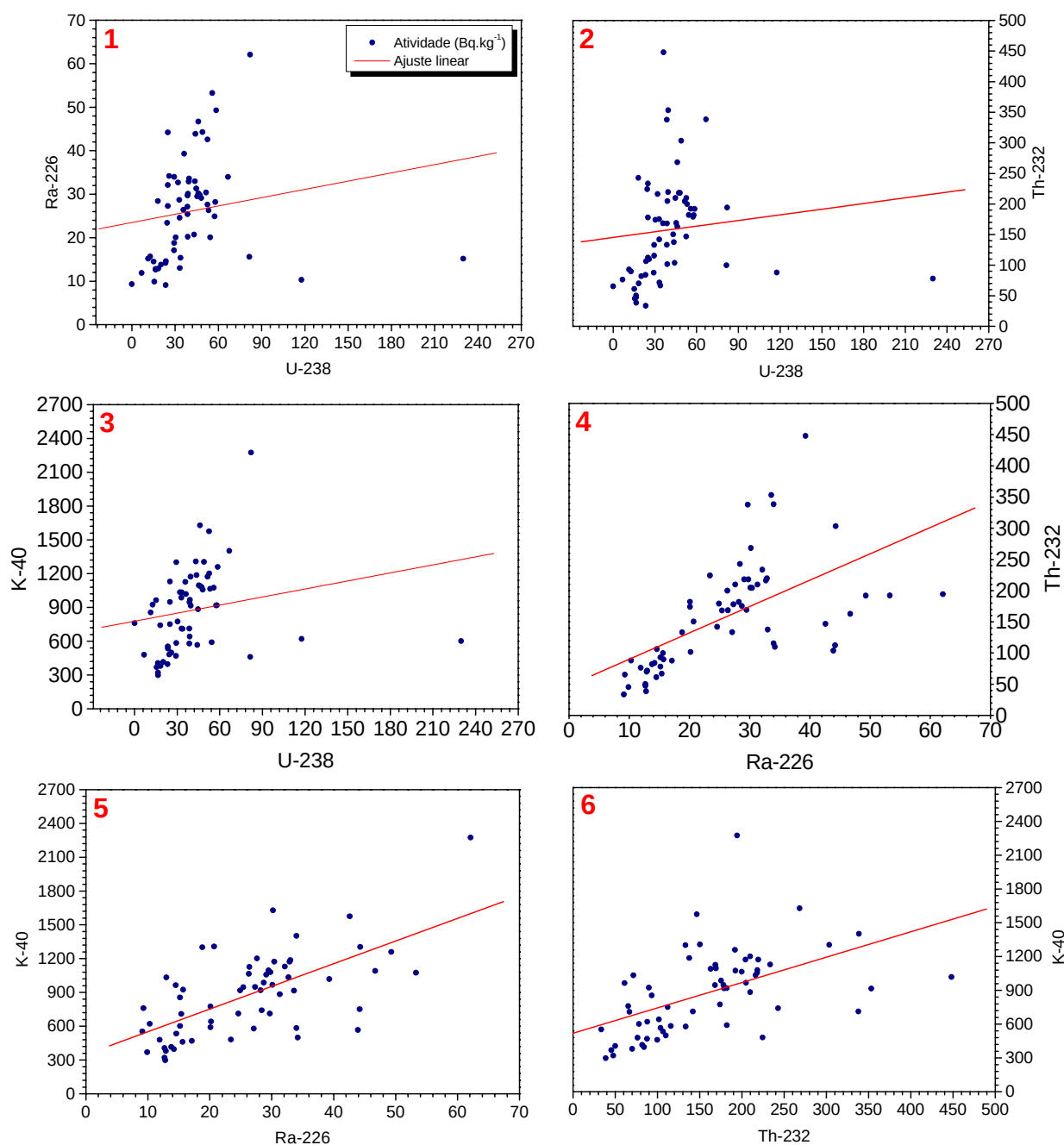


Figura 28. Correlação das atividades dos radionuclídeos avaliados no solo estudado.

Tabela 13. Resultados estatísticos da correlação dos radionuclídeos no solo da área de estudo.

RESULTADOS ESTATÍSTICOS	CORRELAÇÃO					
	$^{238}\text{U} - ^{226}\text{Ra}$	$^{238}\text{U} - ^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U} - ^{40}\text{K}$	$^{226}\text{Ra} - ^{232}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra} - ^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th} - ^{40}\text{K}$
r	0,17	0,20	0,20	0,60	0,65	0,52
r ²	0,028	0,039	0,041	0,347	0,416	0,267
Desvio padrão	11,780	85,209	365,520	69,320	285,244	319,328
Valor - P	0,1932	0,3770	0,1167	< 0,0001	< 0,0001	< 0,0001
N	62	62	62	62	62	62

Para a correlação $^{238}\text{U} - ^{232}\text{Th}$ ($F = 103,77$ e $p = 0$); $^{238}\text{U} - ^{40}\text{K}$ ($F = 312,67$ e $p = 0$); $^{226}\text{Ra} - ^{232}\text{Th}$ ($F = 146,05$ e $p = 0$); $^{226}\text{Ra} - ^{40}\text{K}$ ($F = 325,66$ e $p = 0$) e $^{232}\text{Th} - ^{40}\text{K}$ ($F = 220,92$ e $p = 0$), com $n = 62$, $n-1$ graus de liberdade, para 95% de confiabilidade, foi caracterizado que os radionuclídeos em estudo não apresentam grau significativo de correlação. É possível observar uma divergência entre a análise de variância e a análise de dispersão realizada pelo valor de r , isto devido a margem de confiança de cada tipo de teste.

A Figura 29 apresenta de forma comparativa as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K no solo estudado.

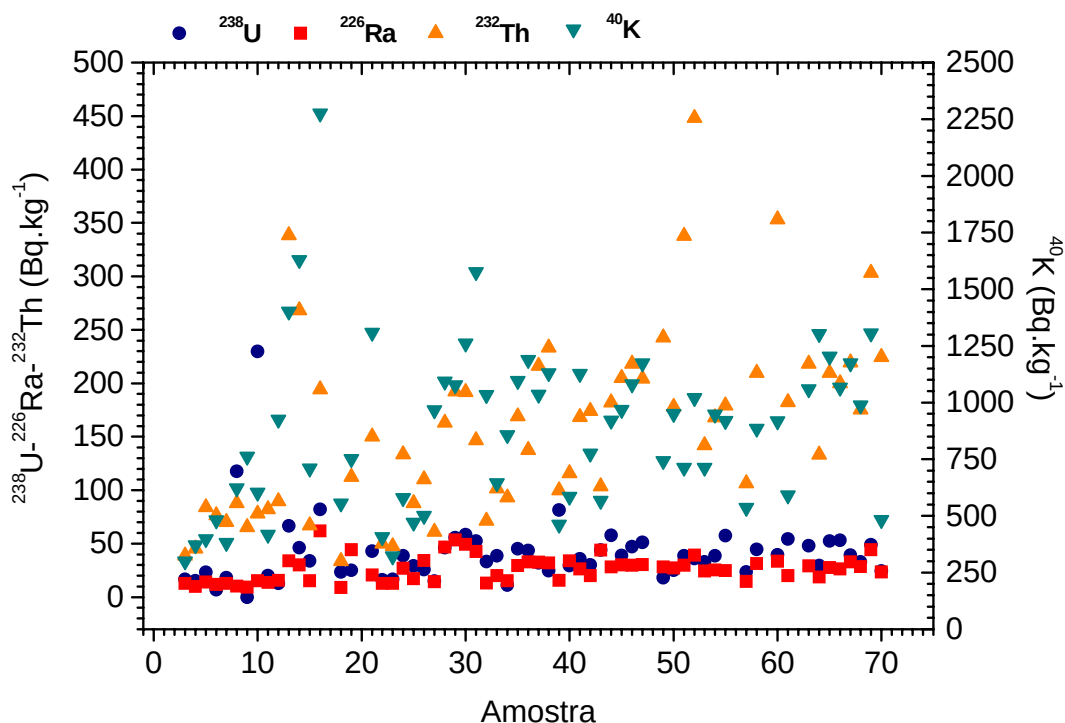


Figura 29. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K no solo da área estudada.

Comparando os valores obtidos por amostra, observa-se que 100% das amostras apresentaram atividades específicas para o ^{40}K superiores às dos demais radionuclídeos, 100% das amostras de ^{232}Th apresentam atividades específicas superiores às do urânio e do rádio, 79% dos valores do ^{238}U são superiores aos do ^{226}Ra , enquanto que apenas 21% das amostras analisadas apresentam atividades do ^{226}Ra superiores às do ^{238}U .

4.4.2 Amostras de rochas graníticas

A Figura 30 apresenta as atividades dos radionuclídeos para as amostras de rochas graníticas. Convém observar que, para efeito de tratamento estatístico, as amostras cálcio-silicáticas anfibolíticas anômalas em urânio foram tratadas isoladamente.

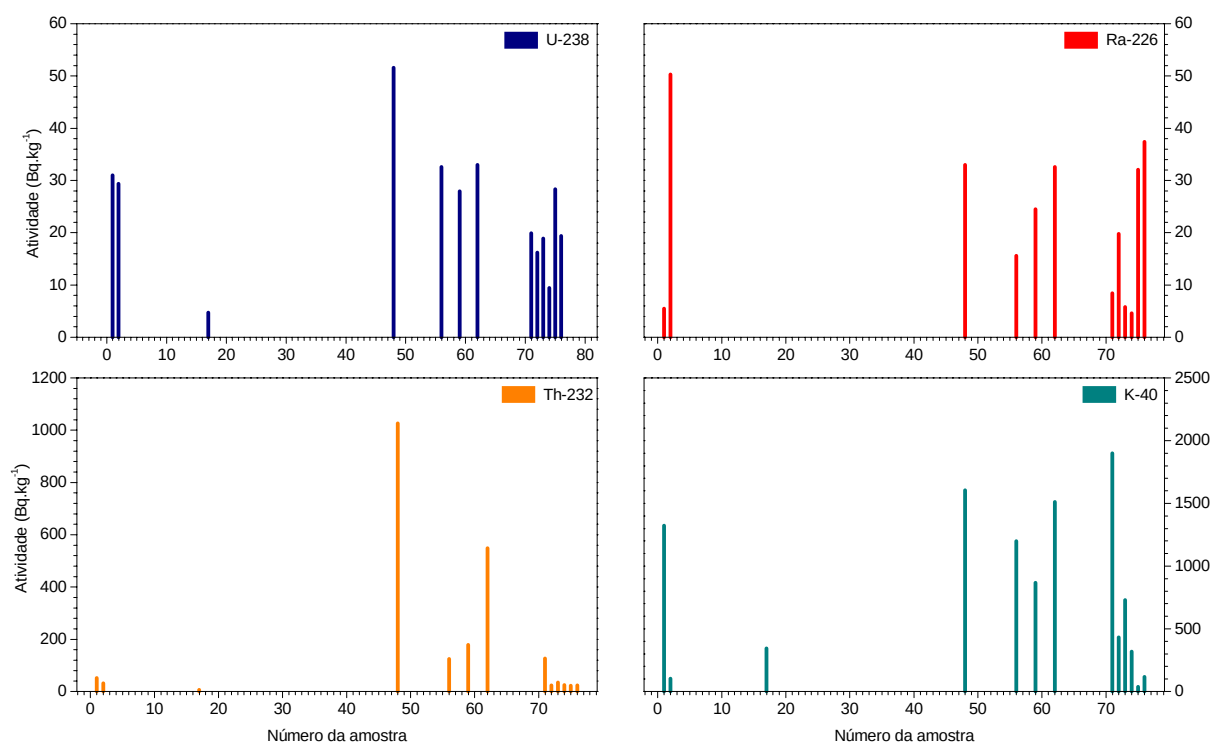


Figura 30. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas rochas graníticas da área de estudo.

Considerando à estatística descritiva relacionada às médias aritméticas, medianas e modas, e a distribuição de frequências da Figura 31, o ^{238}U é o único radionuclídeo que apresenta uma distribuição mais homogênea para as amostras de rochas estudadas. O ^{226}Ra , ^{232}Th e o ^{40}K apresentam uma distribuição mais heterogênea para essas rochas. Os valores das curtoses para o ^{238}U e ^{232}Th foram superiores ao valor de normalidade, 0,263, caracterizando curvas de frequências mais abertas que a normal. No caso do ^{226}Ra e ^{40}K , foi caracterizada a formação de curvas de frequências mais fechadas que a normal, ou mais agudas em sua parte superior.

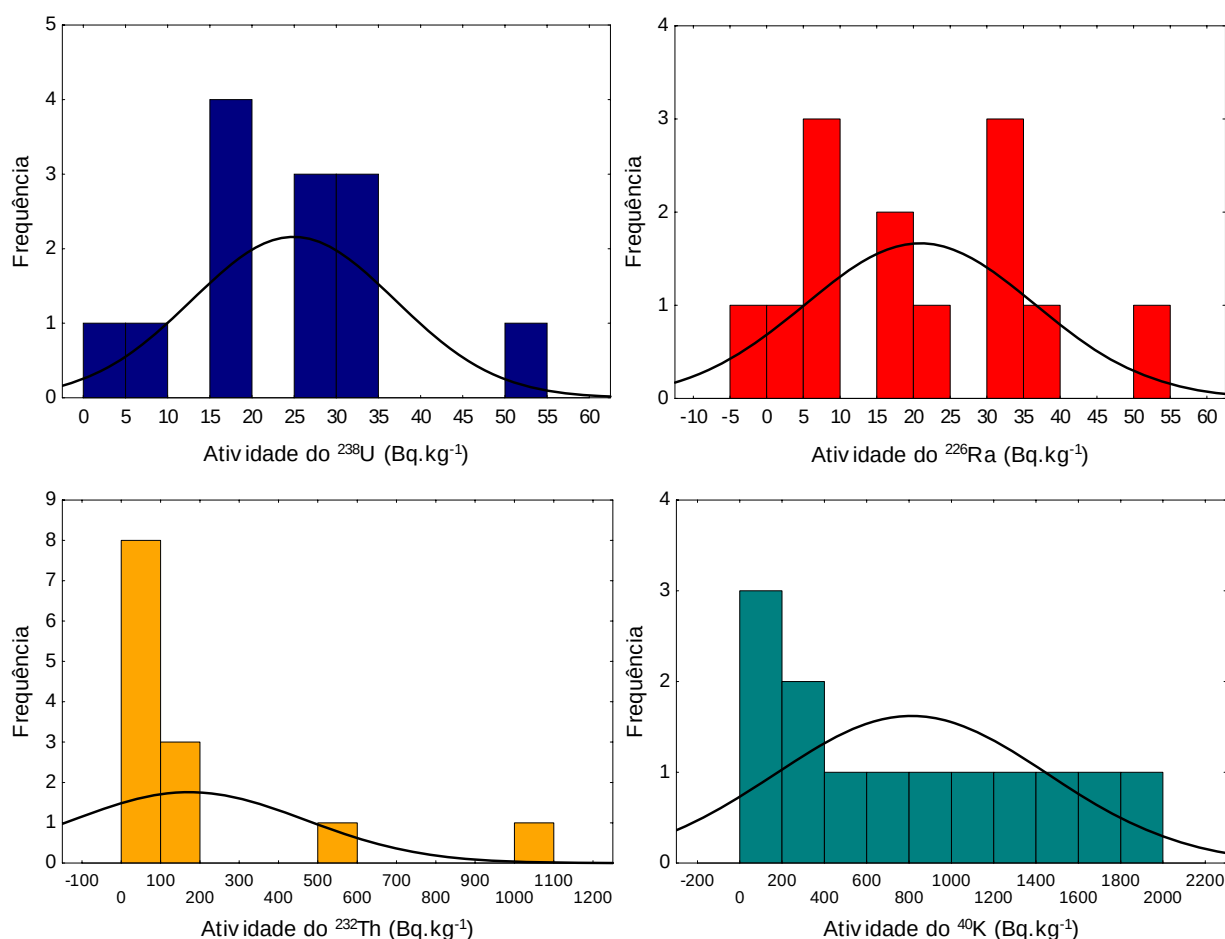


Figura 31. Distribuição de frequências para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas rochas graníticas estudadas.

Os valores dos coeficientes de assimetrias de Pearson para as atividades dos radionuclídeos nas rochas graníticas, indicam que para o ^{238}U ocorre assimetria moderada à esquerda, $As = -0,78$. O ^{226}Ra e o ^{40}K apresentaram assimetrias moderadas com desvio para a direita ($As = 0,17$ e $0,36$ respectivamente), enquanto que para o ^{232}Th a assimetria foi forte a direita, $As = 1,38$.

De acordo com o teste de Kolmogorov-Smirnov, os valores das concentrações de ^{238}U nas amostras de rochas graníticas tenderam para uma distribuição de probabilidade normal. A aplicação desse teste aos valores das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras de rochas analisadas, não evidenciou tendência para a distribuição de probabilidade normal tão acentuada quanto para o urânio.

De acordo com a distribuição qui-quadrado, os valores para as atividades calculadas de todos os radionuclídeos estudados nas rochas diferem significativamente ao longo da área de estudo, evidenciando grandes divergências nas amplitudes dos resultados obtidos para esses radionuclídeos.

A Figura 32 apresenta o diagrama de caixas para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas rochas graníticas. Neste caso, a maior representividade do valor médio foi obtida para o ^{238}U , ou seja, valores menos dispersos, enquanto que o ^{232}Th e o ^{40}K , principalmente este último, apresentaram uma maior dispersão dos dados em torno do valor médio.

Na Figura 33 pode-se evidenciar a correlação dos radionuclídeos nessas rochas pelos diagramas de dispersão apresentados para (1) ^{238}U - ^{226}Ra ; (2) ^{238}U - ^{232}Th ; (3) ^{238}U - ^{40}K (4) ^{226}Ra - ^{232}Th ; (5) ^{226}Ra - ^{40}K e (6) ^{232}Th - ^{40}K), e a Tabela 14 apresenta os resultados estatísticos que mostram as correlações com base nos valores de r e p .

Tabela 14. Resultados estatísticos da correlação dos radionuclídeos em rochas graníticas da área de estudo.

RESULTADOS ESTATÍSTICOS	CORRELAÇÃO					
	$^{238}\text{U} - ^{226}\text{Ra}$	$^{238}\text{U} - ^{232}\text{Th}$	$^{238}\text{U} - ^{40}\text{K}$	$^{226}\text{Ra} - ^{232}\text{Th}$	$^{226}\text{Ra} - ^{40}\text{K}$	$^{232}\text{Th} - ^{40}\text{K}$
r	0,54	0,76	0,51	0,31	0,23	0,60
r^2	0,29	0,58	0,26	0,10	0,051	0,35
Desvio padrão	13,70	199,36	576,74	292,59	650,96	536,80
Valor - P	0,05712	0,00244	0,07837	0,29713	0,45836	0,03176
N	13	13	13	13	13	13

Pelos resultados obtidos para os coeficientes de correlação de Pearson e os valores de p, houve algum grau significativo de correlação para a relação (1) ^{238}U - ^{226}Ra ; (2) ^{238}U - ^{232}Th ; (3) ^{238}U - ^{40}K e (6) ^{232}Th - ^{40}K . O uso do coeficiente de determinação na avaliação da maior correlação, que foi obtida para (2) ^{238}U - ^{232}Th , mostra que para um coeficiente de determinação, r^2 , próximo de 0,60, numa proporção de aproximadamente 60%, as variações nas concentrações de ^{238}U nas rochas graníticas podem ser explicadas pelas variações existentes nas atividades de ^{232}Th nessas mesmas rochas, sendo os 40% restantes, decorrentes de causas aleatórias.

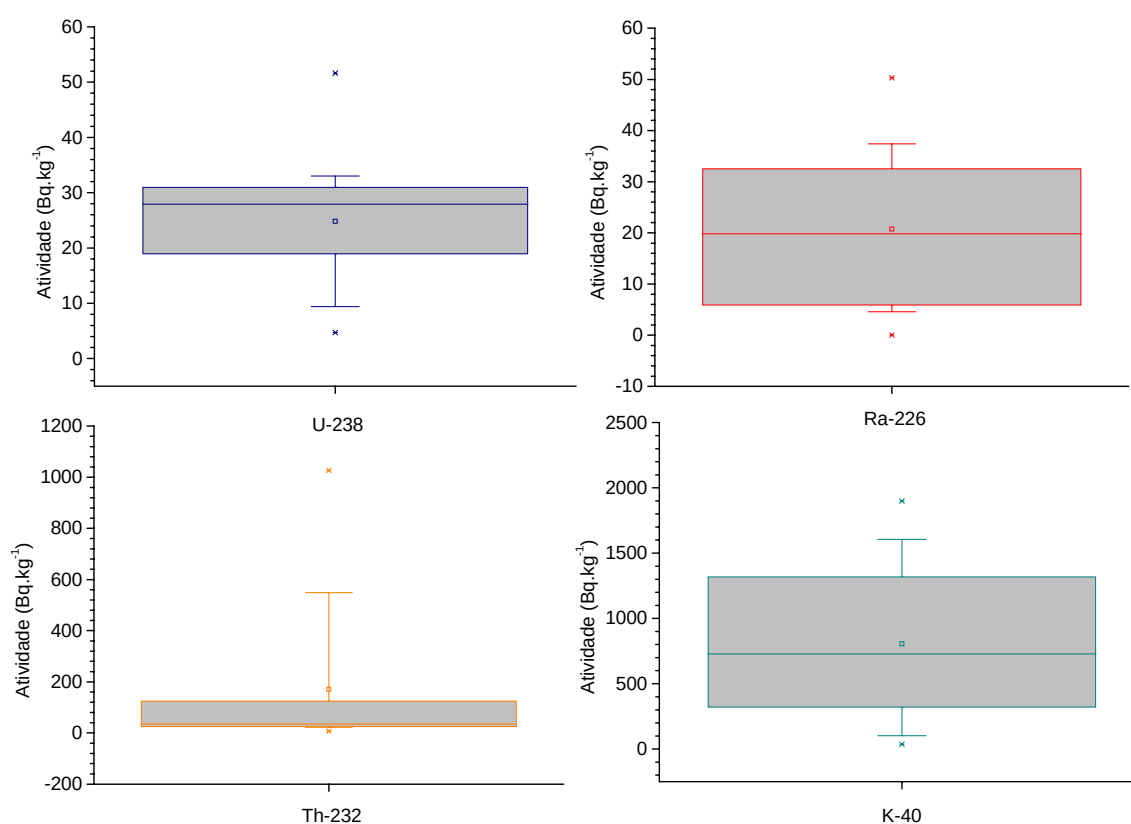


Figura 32. Diagrama de caixas dos radionuclídeos nas amostras de rocha da área de estudo.

O teste ANOVA aplicado para as amostras de rochas graníticas mostrou que não existe diferença significativa entre as médias do (1) ^{238}U - ^{226}Ra ($F = 0,55$ e $p = 0,46$); (2) ^{238}U - ^{232}Th ($F = 3,19$ e $p = 0,09$); (4) ^{226}Ra - ^{232}Th ($F = 3,34$ e $p = 0,08$) com 95% de confiabilidade, para $n = 13$ com $n-1$ graus de liberdade, mostrando que esses

radionuclídeos apresentam grau significativo de correlação. As médias foram consideradas diferentes para as avaliações do (3) ^{238}U - ^{40}K ($F = 19,34$, $p = 1,89\text{E-}4$); (5) ^{226}Ra - ^{40}K ($F = 19,59$ e $p = 1,79\text{E-}4$) e (6) ^{232}Th - ^{40}K ($F = 10,57$ e $p = 0,0034$).

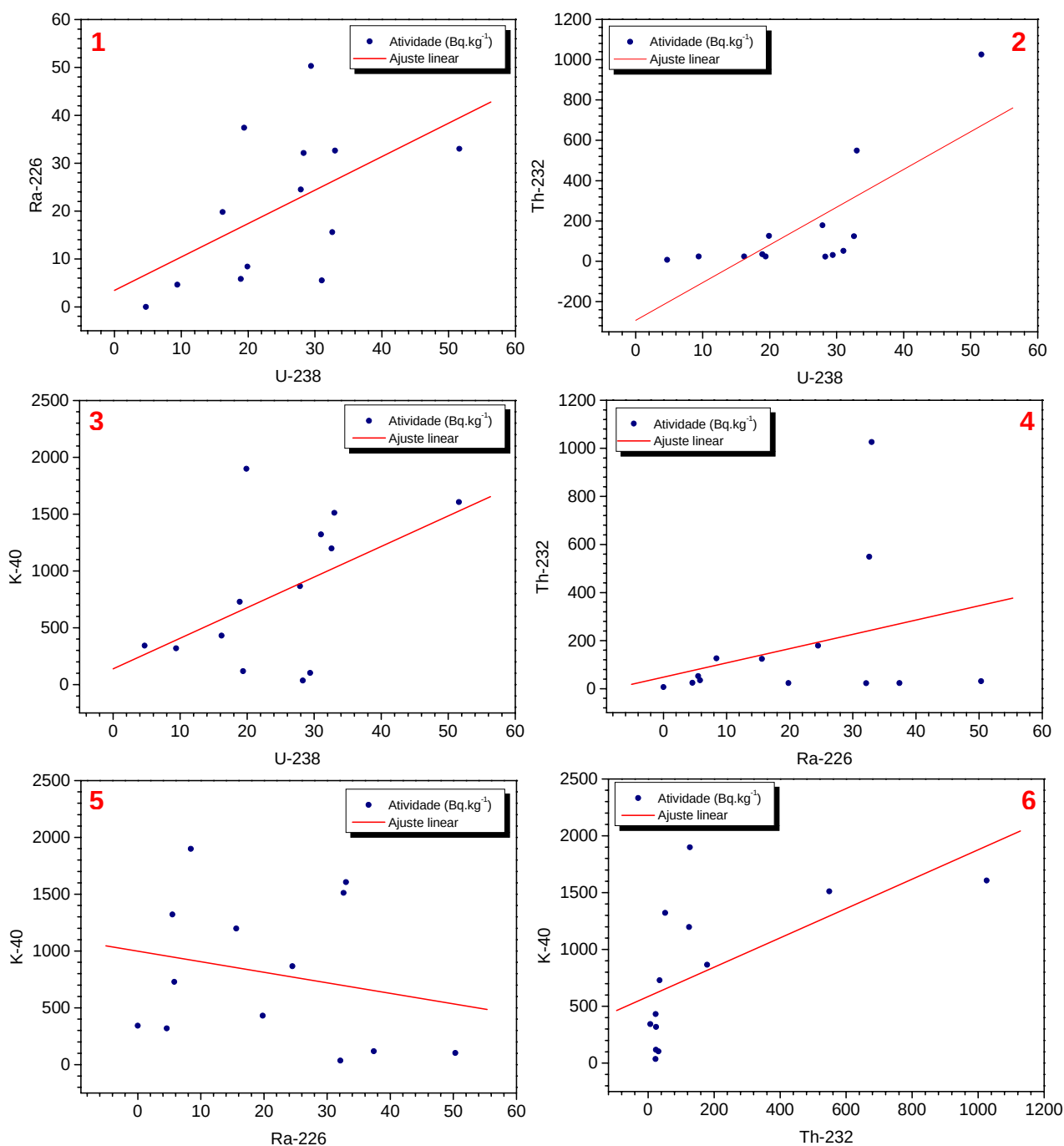


Figura 33. Correlação das atividades dos radionuclídeos em rochas graníticas da área de estudo.

Na Figura 34 é mostrada a comparação entre as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K para as amostras das rochas graníticas. As atividades específicas mais elevadas foram obtidas para o ^{40}K e o ^{232}Th . Para o ^{238}U e o ^{226}Ra os valores são estatisticamente semelhantes.

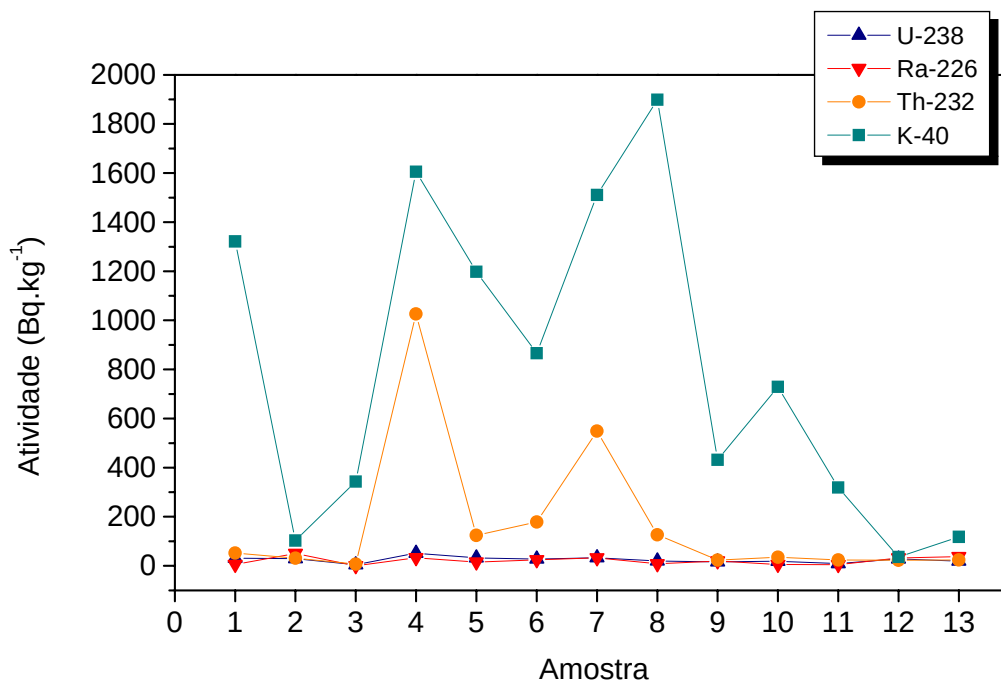


Figura 34. Atividades dos radionuclídeos para as amostras de rochas graníticas analisadas.

4.4.3 Amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas

A Figura 35 mostra a distribuição das atividades dos radionuclídeos ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th nos afloramentos das rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas das fazendas, F1 e F2, com grande variabilidade nos valores das concentrações específicas desses radionuclídeos e com comportamento similar na distribuição do ^{238}U e do ^{226}Ra .

Os diferentes valores calculados para as medidas de tendência: médias aritméticas, medianas e modas (ver Tabela 12) sugerem uma distribuição heterogênea do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th nas rochas anômalas estudadas (Figura 36). O ^{40}K , com a metodologia de análise utilizada, não foi determinado nesse tipo de rocha. As atividades específicas ficaram

abaixo do limite de detecção, $4,7 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Observa-se pelas curtoses apresentadas para o ^{238}U e o ^{226}Ra , $\text{CT} < 0,263$, curvas leptocústicas e para o ^{232}Th a curva é identificada como sendo uma curva platicúrtica, pois $\text{CT} > 0,263$.

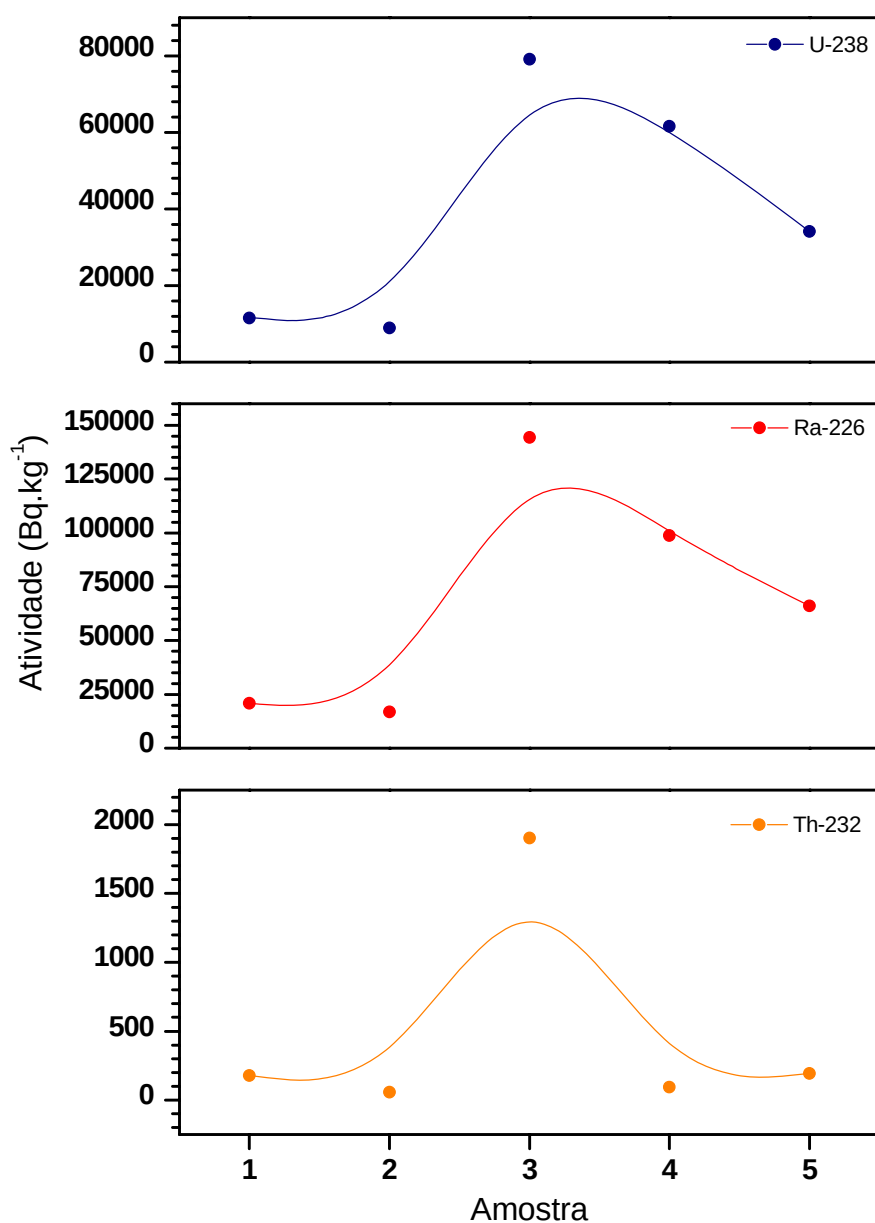


Figura 35. Atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas estudados.

A Figura 37 apresenta os diagramas de caixas ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th obtidos nas amostras de rochas anômalas. Neste caso, as maiores representividades dos valores médios, quando comparadas aos resultados individuais, foram obtidas para o ^{238}U e ^{226}Ra . A Figura 38 apresenta a correlação das atividades específicas do (1) ^{238}U - ^{226}Ra , (2) ^{238}U - ^{232}Th e (3) ^{226}Ra - ^{232}Th .

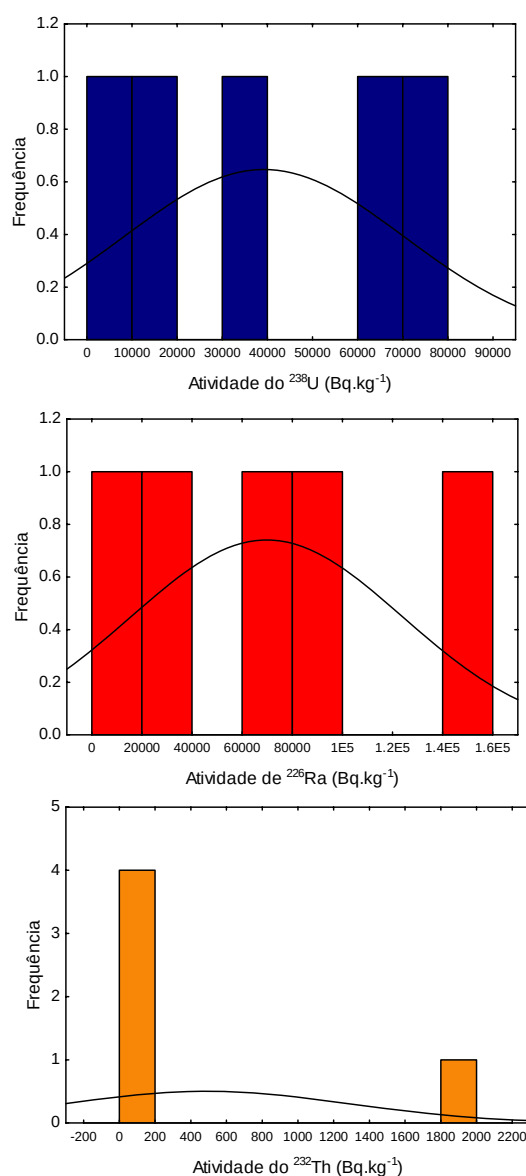


Figura 36. Distribuição de frequências do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th em rochas anômalas da área de estudo.

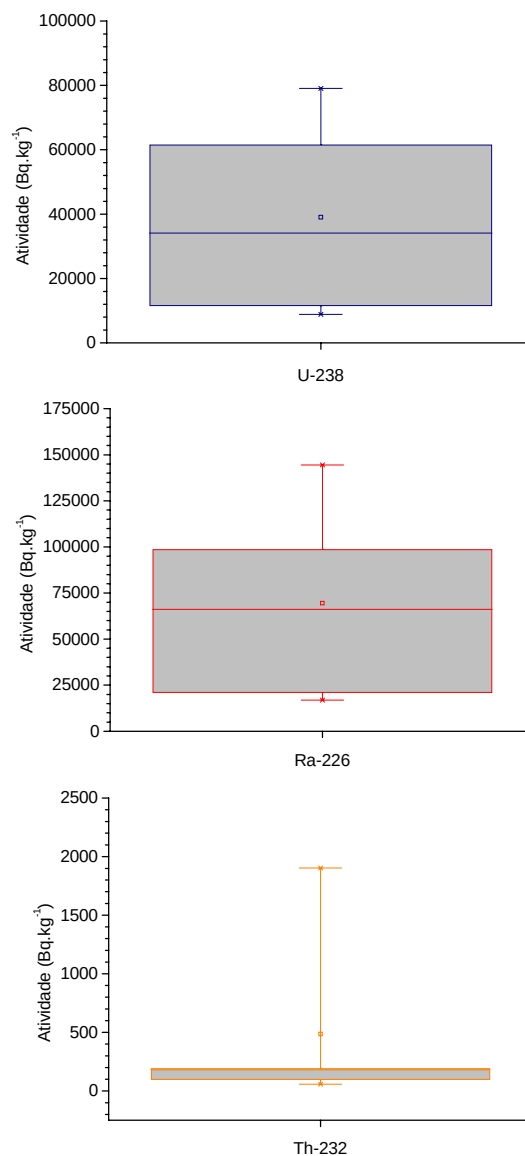


Figura 37. Diagrama de caixas dos radionuclídeos nas amostras de rochas anômalas da área de estudo.

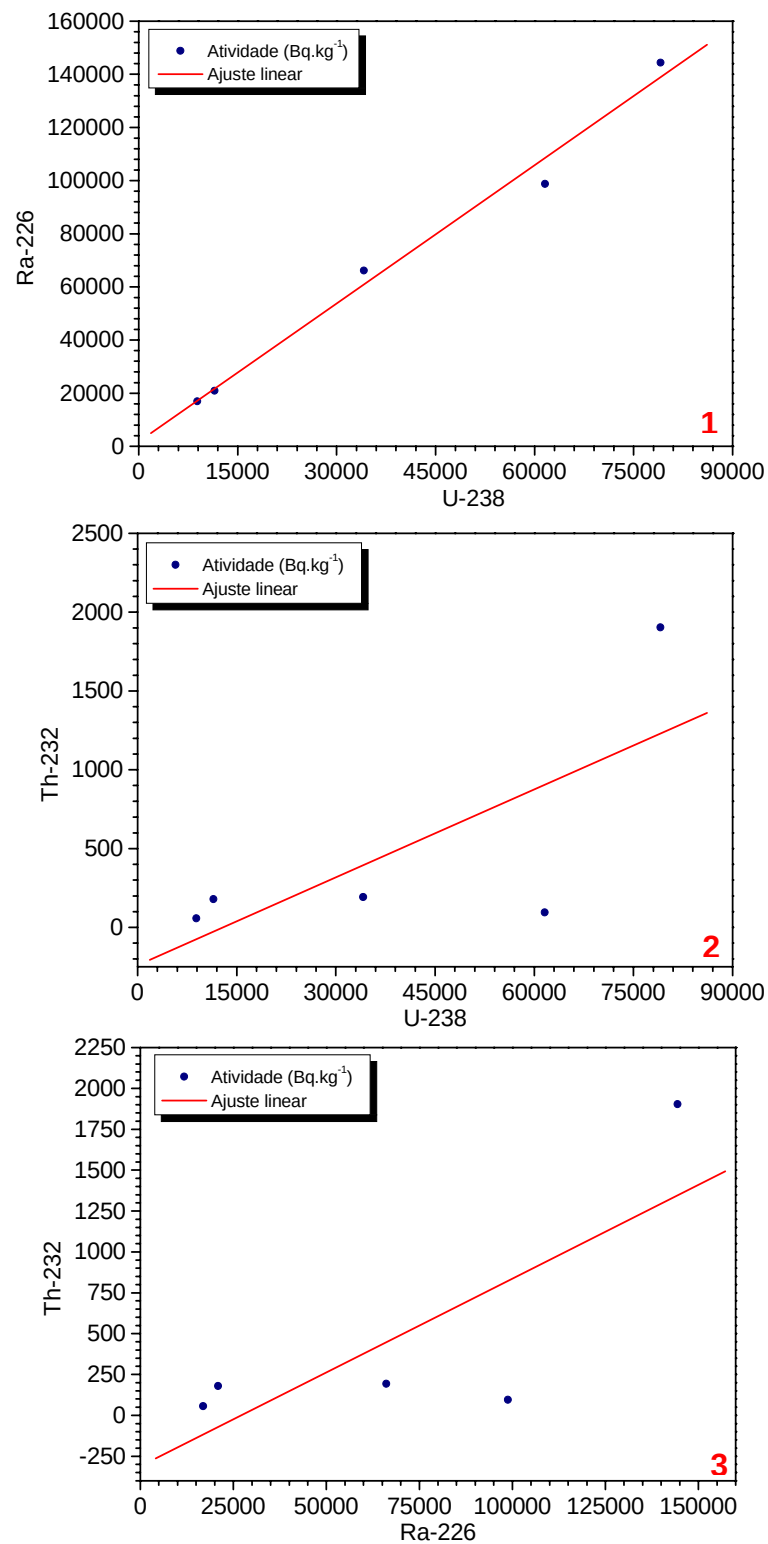


Figura 38. Correlação das atividades dos radionuclídeos nos afloamentos de rochas anômalas das fazendas F1 e F2.

De acordo com a Figura 38, os coeficientes de correlação de Pearson e os valores de p apresentados na Tabela 15, houve excelente correlação entre (1) ^{238}U - ^{226}Ra ($r = 0,99$ e valor-p = $6,5\text{E-}4$), com um coeficiente de determinação igual a 0,98. Isto significa que numa proporção de aproximadamente 98%, as variações nas atividades específicas do ^{226}Ra nesse tipo de rocha, podem ser explicadas pelas variações existentes nas atividades do ^{238}U , sendo os 2% restantes, decorrentes das causas aleatórias, ou seja, quase todo o ^{226}Ra existente nessa rocha foi oriundo do decaimento do ^{238}U .

Tabela 15. Estatística para correlação dos radionuclídeos nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas das fazendas F1 e F2.

RESULTADOS ESTATÍSTICOS	CORRELAÇÃO		
	^{238}U - ^{226}Ra	^{238}U - ^{232}Th	^{226}Ra - ^{232}Th
r	0,99	0,72	0,78
r ²	0,98673286	0,52116856	0,60518518
Desvio padrão	7.165,63085	634,69094	576,32531
Valor - P	6,51167E-4	0,1685	0,12135
N	5	5	5

Para a correlação (2) ^{238}U - ^{232}Th , verificou-se correlação significativa ($r = 0,72$). Neste caso, o coeficiente de determinação r^2 foi de aproximadamente 0,52, mostrando que numa proporção de aproximadamente 52%, as variações das concentrações de ^{238}U nas rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas podem ser explicadas pelas variações existentes nas atividades do ^{232}Th , sendo os 48% restantes, decorrentes das causas aleatórias. Isto sugere a existência de competição de mobilidade do ^{238}U e do ^{232}Th nas estruturas cristalinas das rochas anômalas.

Na correlação (3) ^{226}Ra - ^{232}Th , houve também uma significância ($r = 0,78$). Neste caso, o coeficiente de determinação foi de aproximadamente 0,61, mostrando que, numa proporção em torno de 61%, as variações nas atividades específicas do ^{226}Ra nas rochas anômalas podem ser explicadas pelas variações existentes nas atividades do ^{232}Th , sendo 39% decorrentes das causas aleatórias. Tal como ocorreu na correlação (2) ^{238}U - ^{232}Th , o valor de r^2 obtido para (3) ^{226}Ra - ^{232}Th , sugere também, a ocorrência de competição entre o ^{226}Ra e ^{232}Th nas estruturas cristalinas desse tipo de rocha.

Convém observar que os coeficientes de assimetrias de Pearson apresentados na Tabela 12, mostraram que para o ^{238}U e o ^{226}Ra as assimetrias são moderadas a direita ($As = 0,48$ e $0,18$, respectivamente) e para o ^{232}Th a assimetria é forte a direita ($As = 1,16$).

Os valores do χ^2 , para os radionuclídeos analisados nas rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas foram muito superiores ao valor crítico $\chi^2_{0,05}$, com 95% de confiança para n-1 graus de liberdade. De acordo com esta distribuição, as atividades de todos os radionuclídeos diferem significativamente ao longo da área.

Um teste mais sensível as variações das médias (ANOVA) aplicado para os valores correlacionados na Figura 38, mostrou-se bastante significativos na análise de correlação do ^{238}U - ^{226}Ra ($F = 1,20$ e $p = 0,31$) para os afloramentos em cálcio-silicáticas anfibolíticas. Considerando as correlação para ^{238}U - ^{232}Th ($F = 7,80$ e $p = 0,02$) e ^{226}Ra - ^{232}Th ($F = 8,19$ e $p = 0,02$) as médias são significativamente diferentes, o que constata que existe uma menor correlação entre esses radionuclídeos nas rochas anômalas.

A Figura 39 apresenta a comparação entre as atividades do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th determinados nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas das fazendas F1 e F2.

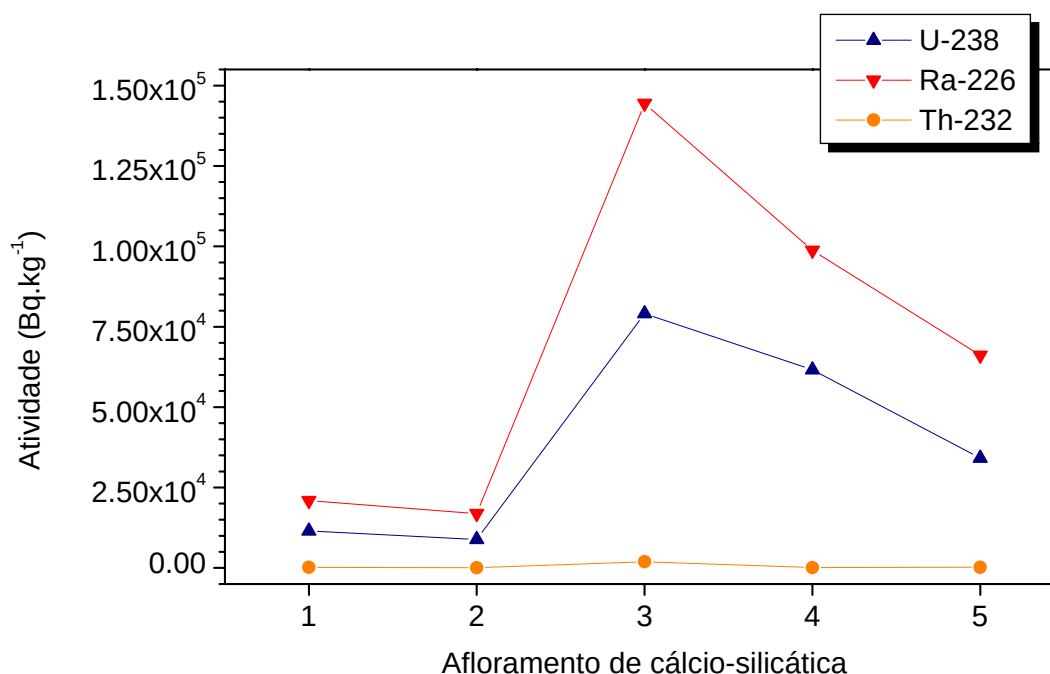


Figura 39. Atividades dos radionuclídeos para as amostras de rochas anômalas da área de estudo.

Para todas as amostras, o ^{226}Ra apresentou-se com atividades específicas superiores às do ^{238}U e este com atividades superiores às do ^{232}Th . Para o ^{40}K , os valores mantiveram-se abaixo do limite de detecção.

4.5 Teores dos radionuclídeos

Com auxílio da Equação 19 foram calculados os teores dos radionuclídeos de interesse. A Tabela 16 apresenta a identificação das amostras e os teores do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , em solo e rochas, e a Tabela 17 os resultados estatísticos obtidos. Para as amostras de solo, foram encontrados teores menores que o LD a $18,4 \text{ mg.kg}^{-1}$ de ^{238}U ; $0,1$ a $1,7 \text{ ng.kg}^{-1}$ de ^{226}Ra ; $8,6$ a $109,4 \text{ mg.kg}^{-1}$ de ^{232}Th e $1,2$ a $8,8 \text{ mg.kg}^{-1}$ de ^{40}K . Nas rochas graníticas, os teores do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K variaram respectivamente de $0,4$ a $4,1 \text{ mg.kg}^{-1}$; menor que LD a $1,4 \text{ ng.kg}^{-1}$; $1,7$ a $254,6 \text{ mg.kg}^{-1}$ e $0,2$ a $7,3 \text{ mg.kg}^{-1}$. Os maiores teores foram observados nas rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, variando de $712,4$ a $6.347,7 \text{ mg.kg}^{-1}$ de ^{238}U ; 460 a 3.900 ng.kg^{-1} de ^{226}Ra ; $14,1$ a $468,0 \text{ mg.kg}^{-1}$ de ^{232}Th e nenhum valor foi observado para o ^{40}K .

As Figuras 40, 41 e 42 apresentam os teores de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e o ^{226}Ra , nas amostras de solo, rochas graníticas e rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas anômalas em urânio, respectivamente.

Os valores estão na escala logarítmica decimal, para uma melhor visualização dos resultados, em função das diferentes amplitudes obtidas. Para as amostras de solo (Figura 40) os maiores teores foram do ^{232}Th e os menores do ^{226}Ra . Os teores do ^{238}U e do ^{40}K , estão mais correlacionados. Para as amostras de rochas graníticas (Figura 41), o comportamento dos teores foi semelhante aos das amostras de solo. Nas rochas anômalas em urânio, como era esperado, os teores de ^{238}U e ^{226}Ra foram superiores aos do ^{232}Th , e o ^{40}K está ausente neste tipo de rocha (menor que o LD). Essas conclusões foram evidenciadas nos cálculos das atividades específicas (Tabelas 11 e 12).

Tabela 16. Teores dos radionuclídeos nas amostras de solo e rochas.

AMOSTRA	CONCENTRAÇÃO			
	U-238 (mg.kg ⁻¹)	Th-232 (mg.kg ⁻¹)	K-40 (mg.kg ⁻¹)	Ra-226 (ng.kg ⁻¹)
F1	920,8	44,2	< LD	570,0
F1	712,4	14,1	< LD	460,0
F1	6.347,7	468,0	< LD	3.900,0
F2	4.943,0	23,4	< LD	2.700,0
F2	2.738,0	47,5	< LD	1.800,0
01	2,5	12,7	5,10	0,15
02	2,4	8,0	0,4	1,4
03	1,3	9,8	1,2	0,33
04	1,2	11,2	1,4	0,27
05	1,9	20,6	1,5	0,41
06	0,5	18,8	1,9	0,33
07	1,5	17,2	1,5	0,33
08	9,4	21,6	2,4	0,28
09	< LD	15,4	2,9	0,11
10	18,4	19,2	2,3	0,41
11	1,6	20,1	1,6	0,38
12	1,0	21,9	3,6	0,45
13	5,4	83,4	5,4	0,93
14	3,7	65,6	6,3	0,83
15	2,7	16,2	2,7	0,42
16	6,6	47,5	8,8	1,7
17	0,4	1,7	1,3	< LD
18	1,9	8,6	2,1	0,27
19	2,0	27,6	2,9	1,2
20	66,9	38,0	2,7	130
21	3,5	37,2	5,1	0,56
22	1,3	12,5	1,6	0,37
23	1,3	11,7	1,2	0,37
24	3,1	32,5	2,2	0,74
25	2,3	21,9	1,8	0,48
26	2,1	27,1	1,9	0,94
27	1,2	15,0	3,7	0,40
28	3,7	40,5	4,2	1,3
29	4,5	46,9	4,2	1,5
30	4,7	46,9	4,9	1,3
31	4,2	36,5	6,1	1,2
32	2,7	18,6	4,0	0,36
33	3,1	24,7	2,5	0,55
34	0,9	23,2	3,3	0,42
35	3,6	41,1	4,2	0,79
36	3,5	34,6	4,6	0,95

continuação na próxima página

continuação da Tabela 16

37	2,6	54,0	4,0	0,91
38	2,0	58,1	4,4	0,86
39	6,5	24,0	1,8	0,44
40	2,4	28,8	2,3	0,93
41	2,9	42,1	4,4	0,72
42	2,4	43,0	3,0	0,54
43	3,5	25,7	2,2	1,2
44	4,7	45,6	3,6	0,77
45	3,1	50,1	3,7	0,83
46	3,8	54,1	4,2	0,83
47	4,1	50,0	4,5	0,85
48	4,1	254,6	6,2	0,92
49	1,5	59,8	2,9	0,79
50	2,0	69,5	3,7	0,73
51	3,1	82,0	2,8	0,81
52	2,9	109,4	3,9	1,0
53	2,7	34,9	2,8	0,66
54	3,1	41,3	3,7	0,72
55	4,6	44,2	3,5	0,70
56	2,6	30,3	4,6	0,43
57	1,9	26,2	2,1	0,40
58	3,6	52,3	3,4	0,86
59	2,2	44,7	3,4	0,68
60	3,2	86,8	3,5	0,92
61	4,4	44,5	2,3	0,56
62	2,7	135,0	5,8	0,89
63	3,9	53,7	4,1	0,81
64	2,4	33,1	5,0	0,53
65	4,2	51,5	4,6	0,77
66	4,3	49,1	4,1	0,74
67	3,2	53,7	4,5	0,86
68	2,6	42,5	3,8	0,78
69	3,9	74,6	5,0	1,3
70	2,0	55,0	1,9	0,65
71	1,6	3,9	7,3	0,24
72	1,3	5,7	1,7	0,53
73	1,5	8,4	2,8	0,16
74	0,8	6,0	1,2	0,13
75	2,3	5,8	0,2	0,89
76	1,6	5,9	0,5	1,0

Tabela 17. Resultados da estatística descritiva e teste de normalidade para os teores do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K na área de estudo.

RESULTADOS ESTATÍSTICOS	TEORES											
	SOLO				ROCHA GRANÍTICA				ROCHA CÁLCIO-SILICÁTICA			
	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	^{238}U	^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K
Mínimo	< LD	0,1	8,6	1,2	0,4	< LD	1,7	0,2	712,4	460,0	14,1	
Máximo	18,4	1,7	109,4	8,8	4,1	1,4	254,6	7,3	6.347,7	3.900,0	468,0	
Amplitude	18,4	1,6	100,8	7,6	3,7	1,4	252,9	7,1	5.635,3	3.440,0	453,9	
Nº. de amostras	62	62	62	62	13	13	13	13	5	5	5	
Média	3,3	0,7	39,3	3,4	2,0	0,6	40,2	3,1	3.132,4	1.886,0	119,4	
Mediana	3,0	0,7	38,8	3,5	2,2	0,5	8,0	2,8	2.738,0	1.800,0	44,2	
Moda	3,0	0,8	20,9	3,6	2,0	0,2	26,8	1,0	1.651,6	1.040,8	70,8	
Média geométrica	2,8	0,6	33,7	3,1	1,8	0,5	13,0	2,0	2.239,7	1.378,1	50,4	< LD
Desvio padrão	2,5	0,3	21,2	1,4	1,0	0,4	73,8	2,4	2.475,9	1.457,0	195,4	
Desvio geométrico	1,8	1,7	1,8	1,6	1,8	2,3	4,2	3,2	2,7	2,6	3,8	
Erro padrão	0,3	0,04	2,7	0,2	0,3	0,1	20,5	0,7	1.107,2	651,6	87,4	
Coef. variação (%)	76,9	46,0	53,9	42,3	47,6	75,1	183,6	78,8	79,0	77,2	163,6	
Assimetria	3,9	0,7	0,9	0,9	0,42	0,4	2,5	0,4	0,39	0,48	2,21	
Curtose	21,8	0,4	1,0	2,0	0,9	-0,8	6,3	-1,4	-2,2	-1,3	4,9	

Teores expressos em mg.kg^{-1} para o ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , e em ng.kg^{-1} para o ^{226}Ra . LD é o limite de detecção.

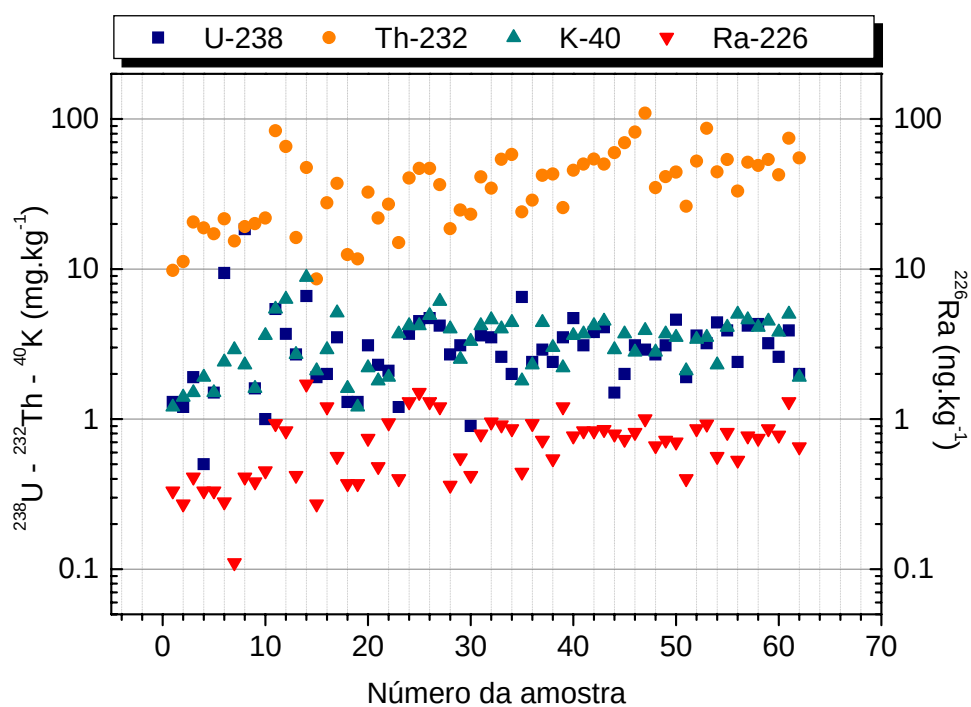


Figura 40. Teores do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra nas amostras de solo da área de estudo.

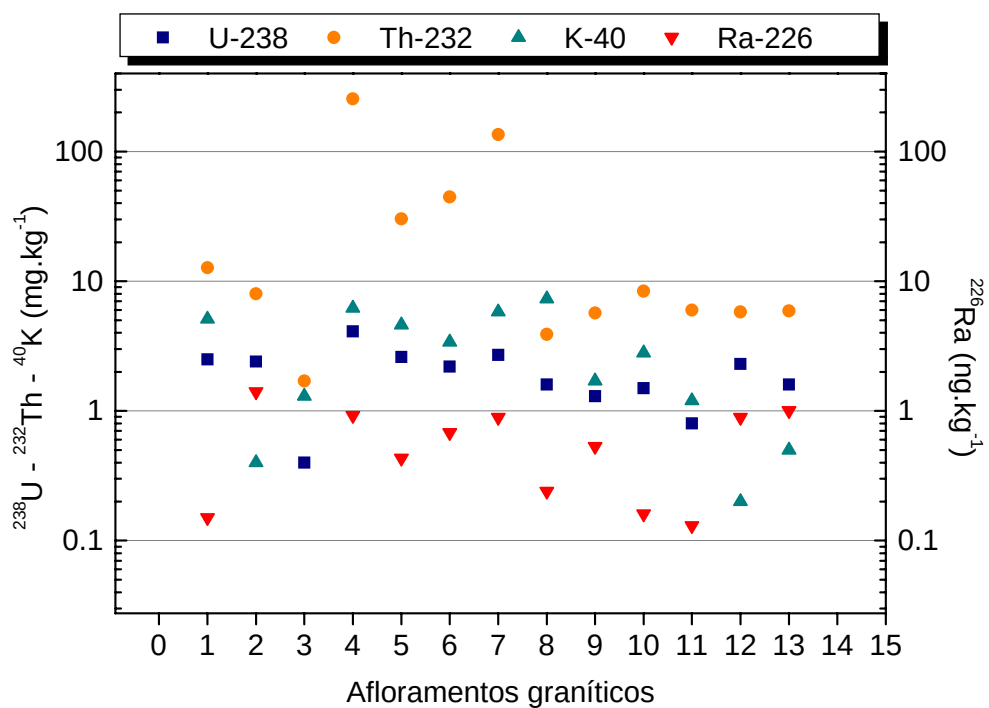


Figura 41. Teores do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra nos afloramentos das rochas graníticas estudadas.

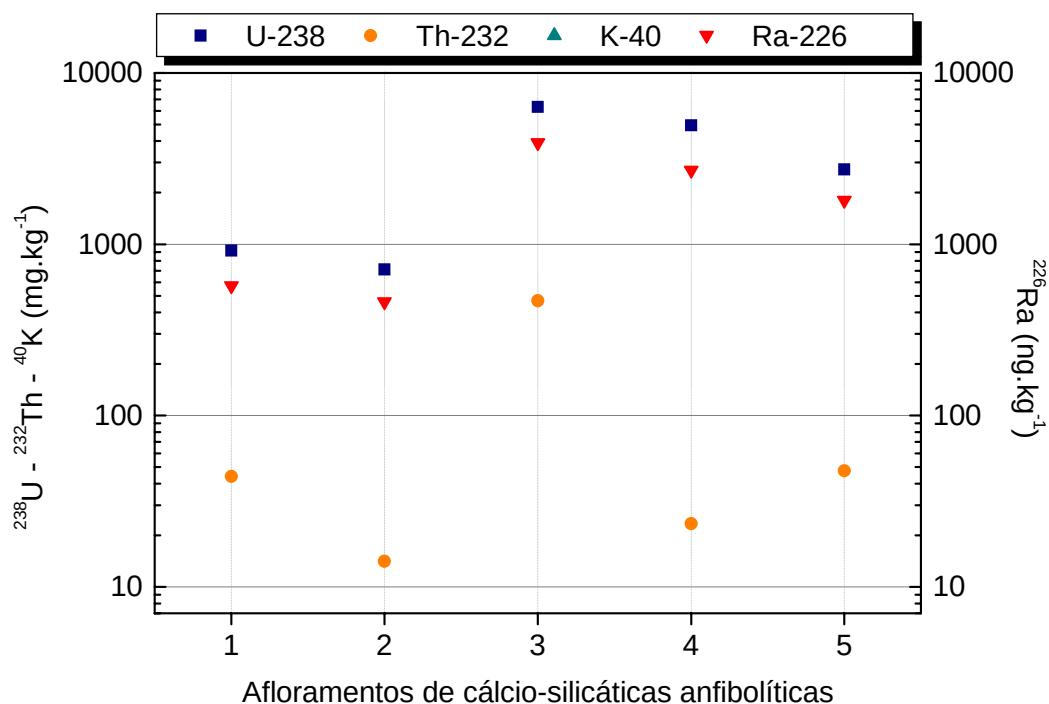


Figura 42. Teores do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra nos afloramentos de rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas das fazendas F1 e F2.

4.6 Estudos geoquímicos do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K

A mobilidade do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e do ^{40}K no meio ambiente é diferenciada e depende essencialmente das condições físicas e/ou químicas existentes. O urânio é facilmente oxidado em solução aquosa, o que permite caracterizá-lo com maior mobilidade. Em rochas ácidas, as concentrações do urânio podem chegar a valores 100 vezes superiores aos observados em outras rochas (EISENBUD; GESELL, 1997). O tório é praticamente insolúvel, principalmente se o meio apresenta concentrações de matéria orgânica e sulfatos, sendo bem menos móvel que o U e o K (DIMOVA et al., 2003).

Em regiões de clima seco com curtos períodos de clima úmido, o pH do solo pode variar de 7 a valores maiores que 7, e os íons de urânio predominantes no período de um ano serão $\text{UO}_2(\text{OH})_3^-$, $\text{UO}_2(\text{OH})^+$ e UO_2^{2+} . A mobilidade do UO_2^{2+} em meio ácido é muito elevada. Convém observar que o excesso de íons carbonatos reduz muito a mobilidade do urânio (CARDOSO, 1978; MCKEE et al., 1987).

A Figura 43 mostra a variação do pH nas amostras de rochas e solo. Para as amostras de rochas, o pH variou de 6,7 a 9,5, com média de $8,3 \pm 0,7$. No caso das amostras de solo, o pH variou de 4,8 a 8,7, com média de $7,2 \pm 0,8$, com maior variação para o solo.

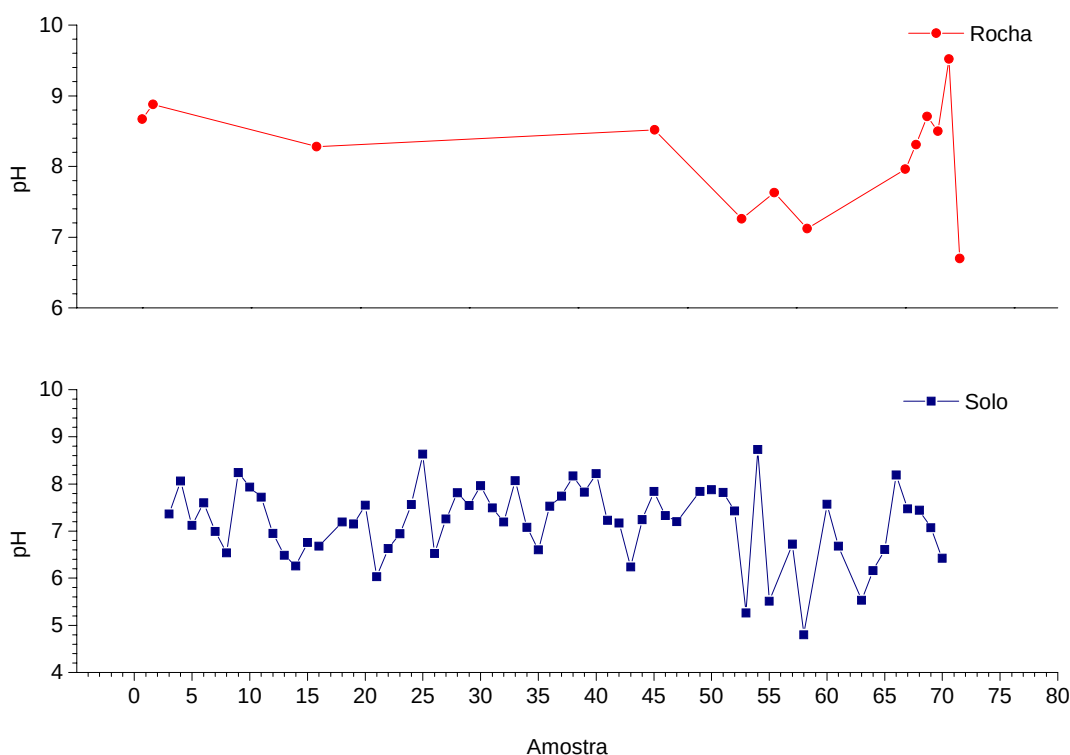


Figura 43. Medidas de pH nas amostras de solo e rochas da área estudada.

A Figura 44 apresenta a atividade ($\log A$) em função da variação do pH para as amostras, de um modo geral. Não existem evidências de correlação direta entre as atividades encontradas e o pH associado aos elementos das séries do U e do Th, assim como do K.

Segundo Anjos et al. (2005), as abundâncias de tório e urânio aumentam normalmente das rochas básicas para as ácidas. A maioria das ocorrências radioativas em rochas é encontrada em granitos e é associada à presença de pegmatitos. Segundo esses autores, a razão tório-urânio (Th/U) tem sido utilizada como indicação de condições oxidantes e redutoras: valores Th/U menores que 2 sugerem que o urânio está disposto na

forma concentrada (em abundância quando comparado ao tório). Em condições redutoras, valores de Th/U maior que 7 indicam uma remoção de urânio, possivelmente em decorrência da lixiviação.

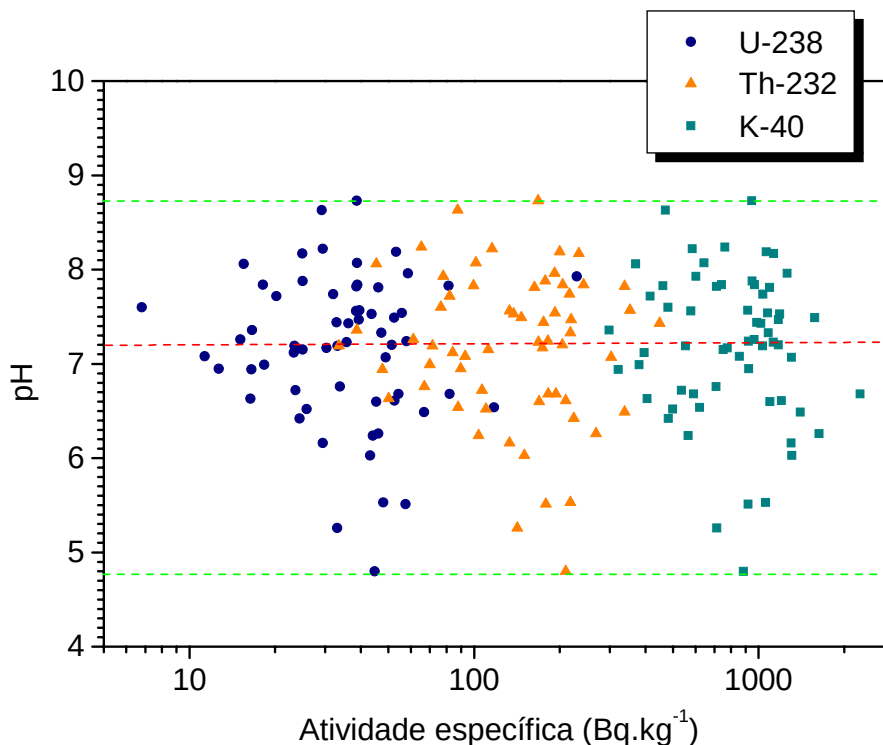


Figura 44. Variação da atividade específica do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em função do pH nas amostras de solo e rochas estudadas.

A Figura 45 apresenta o diagrama da razão Th/U para as amostras de solo, e a estimativa da disponibilidade do urânio em função das atividades gamas dos elementos das séries do ^{232}Th e do ^{238}U . Neste caso, a razão variou de 0,3 a 13,4, com média de 4,6. A maior fração de ^{238}U no solo encontra-se fixo (aproximadamente 80,3%), com baixa mobilidade; a menor fração, concentrada (6,6%) e uma fração intermediária lixiviada (13,1%).

Análises mineralógicas realizadas em rochas cálcio-silicáticas anfibolíticas, permitiram identificar a presença de maguemita (Fe_2O_3) e de óxidos de urânio, entre eles o UO_2 , UO_3 e o U_3O_8 (SANTOS JÚNIOR et al., 2005).

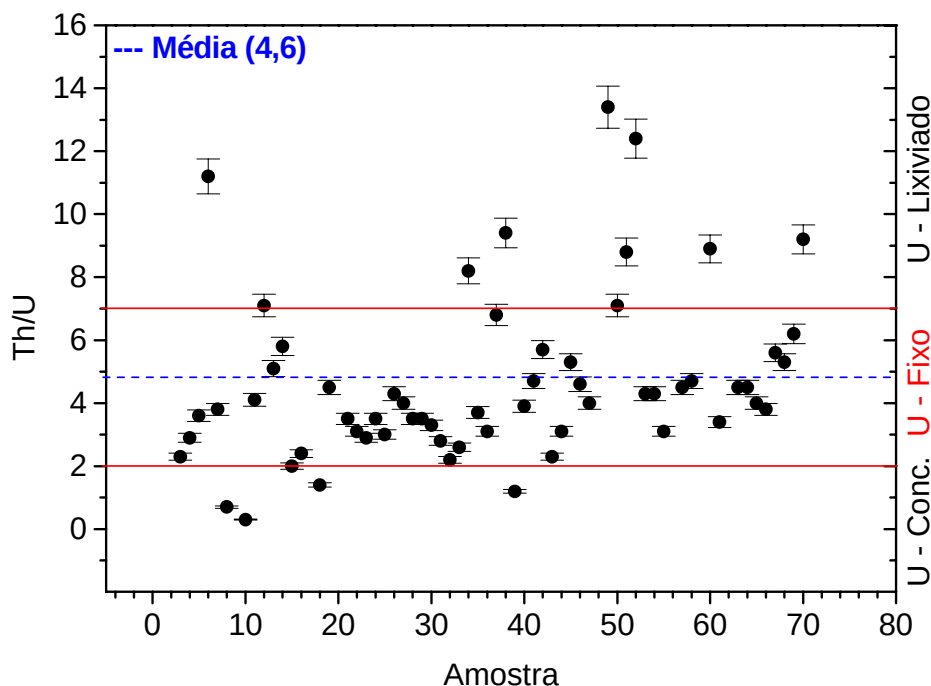


Figura 45. Diagrama da razão Th/U no solo estudado.

Segundo Mckee et al. (1987), o U^{6+} , em ambientes oxidantes, encontra-se associado ao íon férrico, Fe^{3+} , enquanto que o íon U^{4+} é encontrado nas mesmas condições em que o ferro é reduzido (íon ferroso). Podem ocorrer situações em que o íon ferroso reduz o íon uranila (MCKEE et al., 1987). Ambientes redutores, com pH acima de 4,5, promovem a precipitação do urânio. O UO_2^{2+} é um forte oxidante e por isso deriva-se frequentemente a ocorrência conjunta de uraninita e hematita (Fe_2O_3), devido a oxidação do Fe^{2+} para Fe^{3+} ao passar por uma solução aquosa rica em UO_2^{2+} .

4.7 Avaliação da dose de radiação gama natural

Com base nas atividades específicas obtidas experimentalmente e usando a Equação 20, foi possível calcular a taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural, ao ar livre a 1 m da superfície. Do ponto de vista da radioecologia, considera-se como forma de representar os limites anuais permissíveis, o cálculo da taxa de dose equivalente

efetiva a nível ambiental, calculada pela Equação 21, considerando a influência das séries ^{238}U e do ^{232}Th acompanhadas do ^{40}K .

A Tabela 18 apresenta a estimativa das taxas de doses ambientais, tendo como referência os cálculos das taxas de doses absorvidas e equivalentes efetivas e o rádio equivalente. Na Tabela 19 é apresentada a estatística descritiva para os resultados obtidos nessas estimativas. Conforme apresentado nessa última tabela, as taxas de doses absorvidas e equivalentes efetivas, assim como o rádio equivalente, variaram respectivamente de 46,4 a 490,3 nGy.h^{-1} , 56,8 a 601,8 $\mu\text{Sv.a}^{-1}$ e 91,1 a 4.978,6 Bq.kg^{-1} para o solo; 21,1 a 779,4 nGy.h^{-1} , 26,0 a 956,6 $\mu\text{Sv.a}^{-1}$ e 36,3 a 1.624,0 Bq.kg^{-1} para as rochas graníticas e de 3.854,8 a 35.276,9 nGy.h^{-1} , 4.730,8 a 43.293,2 $\mu\text{Sv.a}^{-1}$ e 16.979,6 a 147.159,0 Bq.kg^{-1} para as rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas. As diferenças entre os valores médios (média aritmética, mediana, moda e média geométrica), são nítidas e observados, principalmente para as rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas.

A Figura 46 apresenta a influência das taxas de doses de radiação gama natural equivalentes efetivas devido às séries do ^{238}U e do ^{232}Th , acompanhadas do potássio-40, considerando as amostras de solo, rochas graníticas e as rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas anômalas em urânio, localizadas nos afloramentos das fazendas F1 e F2.

No solo, a maior contribuição para as doses foram proporcionadas pela série do ^{232}Th (49,9%), seguida pelo ^{40}K (35,7%), e com uma menor influência do ^{238}U (14,4%). Para as rochas graníticas, a influência do ^{232}Th também se mostrou maior, com 76,2%, inclusive superior às amostras de solo, enquanto que para o ^{40}K (12,3%) e o ^{238}U (11,5%) as contribuições apresentaram-se bem próximas, estatisticamente iguais. Nas áreas anômalas, rochas do tipo cálcio-silicáticas anfíbolíticas, a maior contribuição para a taxa de dose gama natural equivalente efetiva anual foi devida aos radionuclídeos da série do ^{238}U (97,9%) com uma pequena influência da série do ^{232}Th (2,1%). As medidas realizadas para o ^{40}K apresentaram-se abaixo do LD, sendo desconsideradas para efeito dos cálculos.

Tabela 18. Estimativa da taxa de dose ambiental pelo cálculo das taxas de doses absorvida e equivalente e o rádio equivalente.

AMOSTRA	TAXA DOSE ABSORVIDA (nGy.h ⁻¹)				TAXA D. EQUIVALENTE EFETIVA (μSv.a ⁻¹)				Ra _{eq}
	U-238	Th-232	K-40	TOTAL	U-238	Th-232	K-40	TOTAL	Bq.kg ⁻¹
F1	4.933,2	119,7	< LD	5.052,9	6.054,2	146,9	< LD	6.201,1	21.180,1 ± 3,8
	3.816,7	38,1	< LD	3.854,8	4.684,0	46,8	< LD	4.730,8	16.979,6 ± 2,1
F2	34.009,6	1.267,3	< LD	35.276,9	41.737,9	1.555,3	< LD	43.293,2	147.159,0 ± 75,1
	26.483,4	63,5	< LD	26.551,9	32.501,5	77,9	< LD	32.579,4	98.906,8 ± 2,5
	14.669,7	128,5	< LD	14.798,2	18.003,3	157,7	< LD	18.161,0	66.396,8 ± 2,6
01	13,3	34,5	55,8	103,6	16,3	42,3	68,4	127,0	181,5 ± 0,4
02	12,7	21,7	4,4	38,8	15,5	26,6	5,3	47,4	103,3 ± 0,3
03	7,2	26,6	12,6	46,4	8,8	32,6	15,4	56,8	91,1 ± 0,3
04	6,7	30,3	15,6	52,6	8,2	37,1	19,1	64,4	103,3 ± 0,3
05	10,0	55,9	16,7	82,6	12,3	68,6	20,5	101,4	165,0 ± 0,3
06	2,9	50,9	20,3	74,1	3,6	62,5	24,9	91,0	158,1 ± 0,3
07	7,9	46,6	16,0	70,5	9,6	57,2	19,7	86,5	142,3 ± 0,4
08	50,6	58,5	26,2	135,3	62,1	71,8	32,1	166,0	183,6 ± 0,4
09	< LD	41,6	32,1	73,7	< LD	51,0	39,4	90,4	161,3 ± 0,4
10	98,8	51,9	25,4	176,1	121,3	63,7	31,2	216,2	173,1 ± 0,6
11	8,7	54,4	17,5	80,6	10,7	66,8	21,5	99,0	163,1 ± 0,6
12	5,5	59,3	39,0	103,8	6,7	72,7	47,8	127,2	215,2 ± 0,6
13	28,7	225,8	59,1	313,6	35,2	277,1	72,6	384,9	626,0 ± 0,6
14	19,8	177,8	68,7	266,3	24,3	218,2	84,3	326,8	539,3 ± 0,5
15	14,5	43,8	29,9	88,2	17,8	53,7	36,7	108,2	165,6 ± 1,0
16	35,2	128,5	96,0	259,7	43,2	157,8	117,8	318,8	514,9 ± 0,5
17	2,0	4,6	14,5	21,1	2,5	5,7	17,8	26,0	36,3 ± 0,2
18	10,0	23,3	23,4	56,7	12,3	28,6	28,7	69,6	99,6 ± 0,5
19	10,8	74,8	31,7	117,3	13,2	91,7	38,9	143,8	262,4 ± 0,4
20	358,1	102,8	29,5	490,3	439,5	126,1	36,2	601,8	4.978,6 ± 1,8
21	18,6	100,7	55,2	174,5	22,8	123,6	67,7	214,1	336,2 ± 1,9
22	7,0	33,8	17,1	57,9	8,6	41,5	21,0	71,1	115,6 ± 0,5

continuação na próxima página

continuação da Tabela 18

23	7,1	31,7	13,6	52,4	8,7	38,9	16,6	64,2	105,5 ± 0,5
24	16,6	88,0	24,4	129,0	20,3	108,0	30,0	158,3	262,4 ± 0,4
25	12,5	59,4	19,8	91,7	15,4	72,9	24,3	112,6	178,7 ± 0,5
26	11,1	73,3	21,1	105,5	13,6	90,0	25,9	129,5	230,0 ± 0,5
27	6,5	40,7	40,7	87,9	8,0	49,9	50,0	107,9	176,2 ± 0,8
28	19,8	109,6	46,1	175,5	24,3	134,5	56,5	215,3	363,7 ± 0,5
29	23,9	127,1	45,4	196,4	29,4	156,0	55,7	241,1	411,1 ± 0,5
30	25,2	127,0	53,1	205,3	30,9	155,8	65,2	251,9	420,5 ± 0,6
31	22,5	98,7	66,5	187,7	27,6	121,1	81,6	230,3	373,7 ± 0,7
32	14,3	50,3	43,6	108,2	17,5	61,7	53,5	132,7	194,8 ± 0,7
33	16,7	67,0	27,1	110,8	20,5	82,2	33,3	136,0	215,0 ± 0,5
34	4,9	62,8	36,1	103,8	6,0	77,1	44,3	127,4	214,2 ± 0,6
35	19,5	111,3	46,2	177,0	23,9	136,6	56,7	217,2	355,6 ± 0,7
36	18,8	93,7	50,1	162,6	23,1	115,0	61,5	199,6	321,2 ± 0,7
37	13,8	146,3	43,6	203,7	16,9	179,5	53,6	250,0	421,5 ± 0,5
38	10,7	157,4	47,7	215,8	13,2	193,1	58,5	264,8	452,8 ± 0,5
39	35,0	64,9	19,5	119,4	43,0	79,6	23,9	146,5	193,7 ± 0,4
40	12,6	78,1	24,7	115,4	15,5	95,8	30,3	141,6	244,4 ± 0,3
41	15,3	113,9	47,5	176,7	18,8	139,7	58,3	216,8	351,1 ± 0,5
42	13,0	116,5	32,7	162,2	16,0	143,0	40,1	199,1	328,6 ± 0,5
43	19,0	69,5	23,9	112,4	23,3	85,2	29,3	137,8	235,6 ± 0,3
44	24,9	123,5	38,8	187,2	30,6	151,5	47,6	229,7	359,1 ± 0,5
45	16,7	135,6	40,8	193,1	20,5	166,4	50,1	237,0	397,4 ± 0,5
46	20,3	146,4	45,6	212,3	24,9	179,7	56,0	260,6	425,0 ± 0,5
47	22,1	135,4	49,5	207,0	27,1	166,2	60,1	253,4	412,8 ± 0,5
48	22,2	689,4	67,8	779,4	27,3	846,1	83,2	956,6	1.624,0 ± 0,8
49	7,8	161,8	31,3	200,9	9,6	198,6	38,4	246,6	432,5 ± 0,5
50	10,7	188,2	40,0	238,9	13,2	231,0	49,1	293,3	354,9 ± 0,4
51	16,6	221,9	30,0	268,5	20,4	272,4	36,9	329,7	567,7 ± 1,1

continuação na próxima página

continuação da Tabela 18

52	15,6	296,3	43,0	354,9	19,1	363,4	52,8	435,3	758,5 ± 0,5
53	14,1	94,6	30,1	138,8	17,4	116,1	36,9	170,4	282,4 ± 0,5
54	16,6	111,7	39,9	168,2	20,4	137,1	49,0	206,5	338,6 ± 0,5
55	24,7	119,6	38,7	183,0	30,3	146,8	47,5	224,6	351,5 ± 0,5
56	14,0	82,0	50,6	146,6	17,2	100,7	62,0	179,9	285,3 ± 0,8
57	10,1	70,9	22,6	103,6	12,4	87,1	27,7	127,2	208,1 ± 0,4
58	19,2	141,6	37,3	198,1	23,6	173,8	45,8	243,2	399,4 ± 0,5
59	12,0	120,9	36,6	169,5	14,7	148,4	44,9	208,0	346,7 ± 0,6
60	17,0	235,2	38,7	290,9	20,9	288,6	47,5	357,0	609,1 ± 0,5
61	23,4	120,4	24,9	168,7	28,7	147,8	30,6	207,1	326,1 ± 0,5
62	14,2	365,6	63,8	443,6	17,4	448,7	78,3	544,4	933,9 ± 0,5
63	20,6	145,4	44,6	210,6	25,3	178,4	54,8	258,5	422,3 ± 0,5
64	12,7	89,6	54,9	157,2	15,5	110,0	67,4	192,9	309,4 ± 0,9
65	22,6	139,5	50,7	212,8	27,7	171,2	62,2	261,1	420,0 ± 0,6
66	22,9	132,8	44,9	200,6	28,1	163,0	55,2	246,3	394,0 ± 0,5
67	16,9	145,3	49,5	211,7	20,8	178,3	60,7	259,8	436,9 ± 0,5
68	14,2	115,1	41,6	170,9	17,4	141,3	51,1	209,8	355,4 ± 0,4
69	21,0	202,0	55,1	278,1	25,8	247,9	67,6	341,3	578,5 ± 1,5
70	10,5	149,0	20,3	179,8	12,9	182,9	25,0	220,8	381,4 ± 0,6
71	8,5	83,7	80,1	172,3	10,5	102,7	98,3	211,5	335,4 ± 0,4
72	7,0	15,3	18,2	40,5	8,6	18,8	22,4	49,8	86,7 ± 0,4
73	8,1	22,6	30,8	61,5	10,0	27,8	37,8	75,6	112,4 ± 0,6
74	4,1	16,3	13,5	33,9	5,0	20,0	16,5	41,5	63,9 ± 0,4
75	12,2	15,7	1,5	29,4	15,0	19,2	1,9	36,1	67,2 ± 0,3
76	8,4	16,0	5,0	29,4	10,3	19,6	6,1	36,0	80,6 ± 0,3

Ra_{eq}: Rádio equivalente.

Tabela 19. Resultados da estatística descritiva e do teste de normalidade para os as taxas de doses do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras.

RESULTADOS ESTATÍSTICOS	SOLO			ROCHAS GRANITAS			ROCHAS CÁLCIO-SILICÁTICAS		
	$\dot{D}$ (nGy.h ⁻¹)	$\dot{H}$ (μSv.a ⁻¹)	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	$\dot{D}$ (nGy.h ⁻¹)	$\dot{H}$ (μSv.a ⁻¹)	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	$\dot{D}$ (nGy.h ⁻¹)	$\dot{H}$ (μSv.a ⁻¹)	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)
Mínimo	46,4	56,8	91,1	21,1	26,0	36,3	3.854,8	4.730,8	16.979,6
Máximo	490,3	601,8	4.978,6	779,4	956,6	1.624,0	35.276,9	43.293,2	147.159,0
Amplitude	443,9	545,0	4.887,5	758,3	930,6	1.587,7	31.422,1	38.562,4	130.179,4
Nº. de amostras	63	63	63	13	13	13	5	5	5
Média	166,0	203,7	393,1	159,2	195,4	327,5	17.106,9	20.993,1	70.124,5
Mediana	170,9	209,8	336,2	61,5	75,6	112,4	14.798,2	18.161,0	66.396,8
Moda	112,5	138,0	221,6	94,1	115,5	182,6	8.977,7	11.017,8	38.566,2
Média geométrica	147,4	180,9	297,9	83,2	102,1	172,0	12.197,4	14.968,6	51.074,4
Desvio padrão	80,8	99,2	76,2	219,0	268,8	457,3	13.652,9	16.754,3	54.764,4
Desvio geométrico	1,7	1,7	1,8	3,1	3,1	3,0	2,7	2,7	2,6
Erro padrão	10,2	12,5	76,2	60,8	74,6	126,8		7.492,7	24.491,4
Coef. variação (%)	48,7	48,7	153,8	137,6	137,6	139,6	79,8	79,8	78,1
Assimetria	1,2	1,2	7,2	2,3	2,3	2,4	0,4	0,4	0,5

$\dot{D}$: Taxa de dose absorvida; $\dot{H}$: Taxa de dose equivalente efetiva; Ra_{eq}: Rádio equivalente.

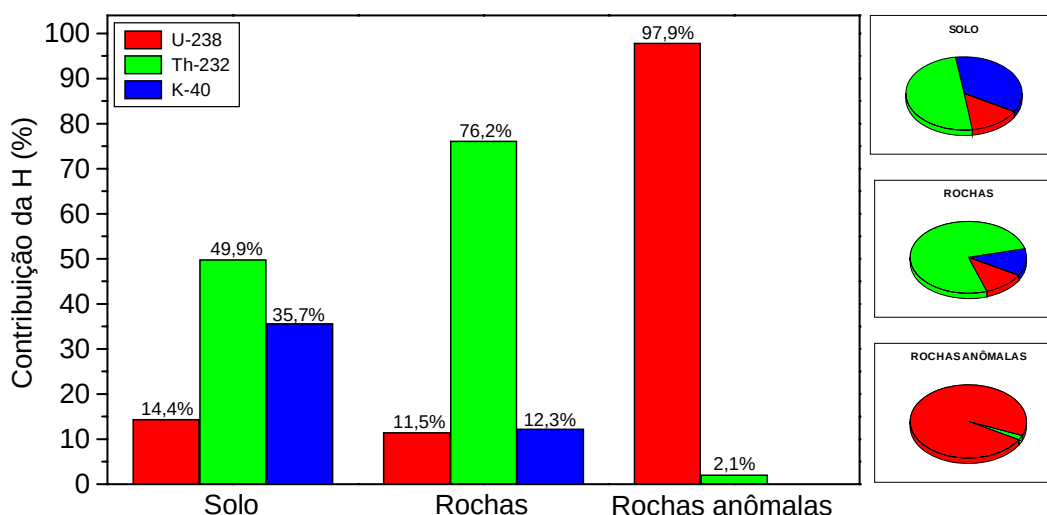


Figura 46. Contribuição das séries do ^{238}U e do ^{232}Th acompanhadas do ^{40}K para a taxa de dose equivalente efetiva.

O solo localizado sobre a ocorrência do afloramento F2 apresentou os maiores valores, quando comparado às outras amostras de solo, com uma taxa de dose de $439,5 \mu\text{Sv} \cdot \text{a}^{-1}$ para os descendentes gama do ^{238}U ; $126,1 \mu\text{Sv} \cdot \text{a}^{-1}$ para série do ^{232}Th e $36,2 \mu\text{Sv} \cdot \text{a}^{-1}$ para o ^{40}K , proporcionando uma taxa de dose total de aproximadamente $601,8 \mu\text{Sv} \cdot \text{a}^{-1}$, uma contribuição de 73,0% para a série do ^{238}U , 21,0% do ^{232}Th e a menor, 6,0%, devido ao ^{40}K . Considerando que existem três tipos de fontes naturais que podem ocasionar uma taxa de dose: o solo, as rochas graníticas e as rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, a maior contribuição para exposição anual, foi calculada para indivíduos que residem próximos as áreas anômalas, aproximadamente 97,8%; seguidas por 1,2% para o solo e 1,0% para as demais rochas. Estes indivíduos, pelas influências destas fontes naturais podem receber uma taxa de dose gama natural equivalente efetiva anual superior a $43,0 \text{ mSv}$, se submetido as condições utilizadas para o cálculo da dose anual apresentadas anteriormente.

De acordo com as recomendações da ICRP-60 de 1991, o limite de exposição à radiação para os indivíduos do público não deve ultrapassar $1,0 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$. Entretanto, observa-se uma contribuição superior a quarenta e três vezes o limite recomendado para indivíduos do público nas áreas anômalas.

O valor máximo de $43,0 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$, estimado no presente trabalho é uma ordem de grandeza maior do aquele estabelecido pela ICRP-60. Isto é muito importante, do ponto de

vista dos efeitos causados pela radiação ionizante. Segundo a UNSCEAR (1993), não existe uma dose segura de exposição à radiação, em relação aos efeitos genéticos, pois, qualquer exposição à radiação pode envolver certo risco de indução de efeitos hereditários e somáticos. Estudos realizados em regiões naturalmente anômalas mostraram correlações significativas entre os níveis de radiação natural e a incidência de câncer (NAMBI; SOMAN, 1987; LUXIN et al., 1990).

4.8 Rádio Equivalente

As Tabelas 18 e 19, apresentadas anteriormente, mostram respectivamente, os valores obtidos para o Ra_{eq} e os resultados estatísticos descritivos para as amostras estudadas. Na Figura 47 estão os resultados do Ra_{eq} para as amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, rochas graníticas e o solo da área estudada, considerando, para efeito dos cálculos as atividades específicas e os respectivos fatores ponderais para o ^{226}Ra , elementos associados a série do ^{232}Th , o ^{40}K e a Equação 22.

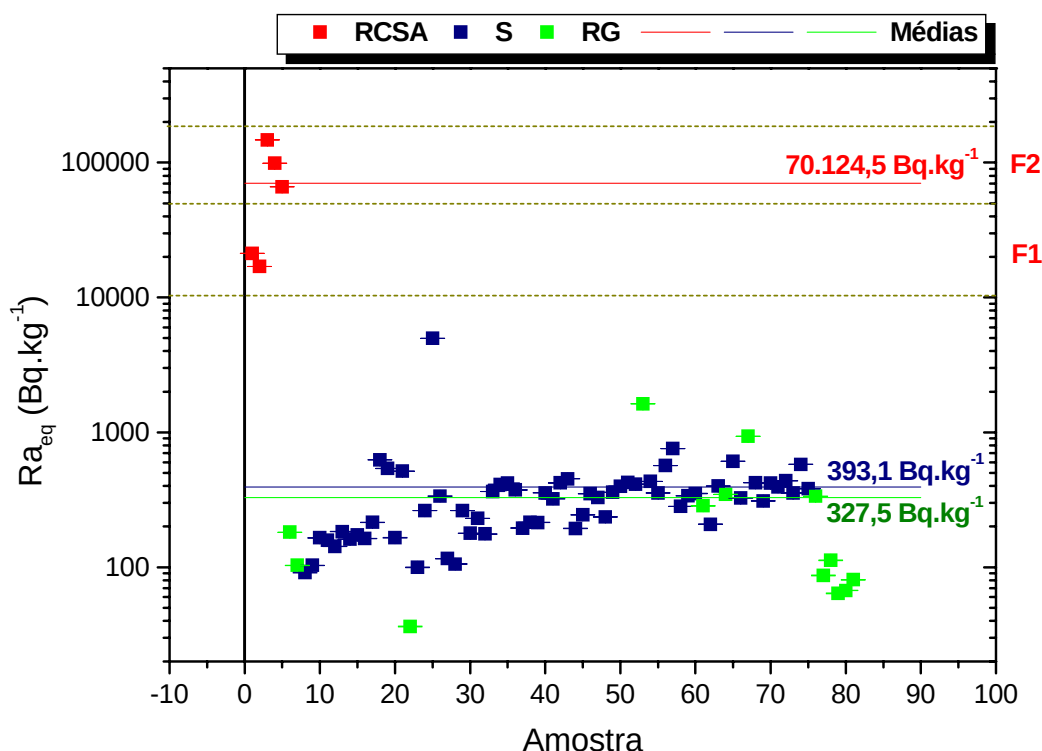


Figura 47. Cálculo do Ra_{eq} para as amostras de rochas e solo na área de estudo.
RCSA: Rocha cálcio-silicática anfíbolítica; S: solo; RG: rocha granítica.

O comportamento mostra maiores valores do Ra_{eq} obtidos para as amostras de rochas anômalas das áreas F1 e F2 com uma variação de 16.979,6 a 147.159,0 Bq.kg⁻¹, e com contribuição de 99,2% devido ao Ra-226 (98,2 - 99,9)% e uma pequena fração, aproximadamente 0,8% (0,1 - 1,8)%, devido aos elementos do ²³²Th. Esses dados são coerentes com os resultados obtidos para a taxa de dose gama equivalente efetiva natural, nas quais, para este mesmo tipo de rocha, foi calculada uma contribuição de 97,9% da dose devido aos elementos do ²³⁸U e uma fração de aproximadamente 2,1% devido ao ²³²Th, com praticamente nenhuma contribuição do ⁴⁰K.

Para as rochas graníticas, o Ra_{eq} variou de 36,3 a 1.624,0 Bq.kg⁻¹, com uma contribuição de 15,5% (0,0 - 48,7%) devida ao ²²⁶Ra, 54,2% (27,2 - 90,4%) devida ao ²³²Th e 30,3% (4,2 - 72,8%), devida ao ⁴⁰K. Estes dados comparados aos calculados pela taxa de dose equivalente efetiva, mostraram-se menos significativos que os apresentados para as rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, porém concordantes, sendo obtida uma contribuição para a dose externa total da radiação gama natural de 11,5% devido ao ²³⁸U, 76,2% devido ao ²³²Th e 12,3% devido ao ⁴⁰K.

Para as amostras de solo, os valores variaram de 91,1 a 4.978,6 B.kg⁻¹, com uma contribuição de 8,6% (5,2 - 18,6%) de ²²⁶Ra; 68,7% (48,1 - 85,1%) do ²³²Th e de 22,7% (9,7 - 42,8%) devida ao ⁴⁰K. A concordância destes valores com a taxa de dose equivalente efetiva calculada para o solo também mostrou-se menos significativa em termos quantitativos, quando da contribuição de cada série para a dose total. Entretanto, observa-se uma correlação bastante significativa dos dados analisados. Os valores das contribuições com base na taxa de dose gama natural equivalente efetiva devida ao ²³⁸U foi de 14,4%, ao ²³²Th foi de 49,9% e devido ao ⁴⁰K foi de 35,7%.

4.9 Estudo comparativo

Uma forma de avaliar os resultados obtidos em estudos radiométricos ambientais é a comparação com outros trabalhos realizados mundialmente, com valores médios a nível de crosta terrestre e com valores referenciais, normalmente publicados pelos órgãos certificados, como a UNSCEAR e a IAEA. As Tabelas 20, 21, 22 e 23 mostram os

resultados obtidos neste trabalho e os da literatura científica mundial, considerando as atividades específicas, taxas de doses de radiação gama natural absorvidas e equivalentes efetivas, assim como o rádio equivalente. Alguns trabalhos tratam os valores representativos como as médias aritméticas, ao passo que existe uma tendência de adotar os valores modais como mais representativos. Entretanto, no presente trabalho utilizou-se a média aritmética como uma medida mais realista da condição radiométrica do meio ambiente, a qual permite divulgar com maior significância os resultados obtidos experimentalmente.

Na Tabela 20, existe uma pequena diferença dos valores médios mundiais apresentados por alguns autores, em decorrência do uso de diferentes metodologias para suas determinações, diferentes número de amostragens, e em alguns casos, diferentes tipos de médias utilizadas como referencial. Outros autores utilizam o valor médio como referência e a faixa de variação dos valores (matemática intervalar), como forma de mostrar a variabilidade dos dados obtidos experimentalmente.

Os valores médios apresentados na Tabela 21 são os mais citados e referenciados nos estudos radioecológicos. Essa tabela mostra as atividades específicas, as taxas de doses de radiação gama natural absorvidas a 1 m da superfície e as contribuições para a taxa de dose absorvida em estudos de dosimetria ambiental, utilizando como referência na estimativa dessas taxas de doses, os principais emissores gamas das séries do ^{232}Th , ^{238}U e o ^{40}K (SELVASEKARAPANDIAN et al., 2000). Os valores das atividades específicas obtidos nesse estudo e apresentados nessa tabela são em média, superiores aos referenciados mundialmente, apresentando fator de concentração em atividade ($f_c = [\text{Experimental}] / [\text{Referência}]$) de 6,0 para ^{232}Th ; 1,3 para ^{238}U e 2,3 para ^{40}K em solo. A maior contribuição para a taxa de dose absorvida nas amostras foi calculada para os elementos da série do ^{232}Th , 65,6%, divergindo significativamente do parâmetro mundial que é de 38,8%. A contribuição do ^{238}U foi de 10,8% comparada a 25,0% para referência mundial e o ^{40}K com 23,6% para o valor empírico e 36,2% para o referencial mundial.

Tabela 20. Estudo comparativo das atividades específicas, taxas de doses absorvidas, equivalentes efetivas e do rádio equivalente para solo.

LOCAL	ATIVIDADE (Bq.kg ⁻¹)				$\dot{D}$	$\dot{H}$	Ra_{eq}	REF.
	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	nGy.h ⁻¹	mSv.a ⁻¹	Bq.kg ⁻¹	
Presente estudo*	40,6	26,1	157,9	874,7	159,4	195,5	319,2	
Média mundial	24,0; 25,0; 35,0; 42,0	23,0; 29,0; 35,0	24,0; 25,0; 30,0	370,0; 400,0	42,8; 51,0**	0,4**	104,2 (80,5 - 127,2)	[1; 5; 6; 8]
Gudalore	37,7 (16,7 - 62,4)		75,3 (18,8 - 272,1)	195,2 (77,5 - 595,9)	73,0 (27,5 - 203,9)			[1]
Cacers	38,3		41,0	653,0	56,6			[1]
Taiwan	30,0		44,0	431,0	54,0			[4]
Ullal	546,0		2,971,0	268,0	2.212,0			[1]
Hong Kong	119,0		146,0	352,0	87,0			[1]
Coastal Karnataka	36,0		31,1	122,0	41,7			[1]
Tripoli	10,5		9,5	270,0	22,7			[2]
Dhaka City	33,0		16,0	574,0	81,0			[1]
Irlanda	37,0	60,0	26,0	350,0				[3]
Japão	32,4		54,0	794,0	83,0			[1]
Malasia	29,5 (25,1-34,9)		26,3 (21,4 - 31,8)	478,9 (267,4 - 764,7)				[5]
Kalpakkam, Índia	16,0 (5,0 - 71,0)		119 (15 - 776)	406 (200 - 854)				[7]

[1] SELVASEKARAPANDIAN et al., 2000; [2] SHENBER, 1997; [3] MCAULAY; MORAN, 1988; [4] TAHIR, et al., 2005; [5] YASIR, et al., 2007; [6] PAVLIDOU et al., 2006; [7] KANNAN et al., 2002; [8] MYRICK, et al., 1982. * Média aritmética; ** Mediana; $\dot{D}$: Taxa de dose absorvida; $\dot{H}$: Taxa de dose equivalente efetiva; Ra_{eq} : Rádio equivalente.

Tabela 21. Atividades e contribuição do ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K em solo para a taxa de dose absorvida.

<i>Nuclídeo</i>	<i>Média mundial*</i>			<i>Presente estudo</i>		
	<i>A (Bq.kg⁻¹)</i>	<i>$\dot{D}$ (nGy.h⁻¹)</i>	<i>%</i>	<i>A (Bq.kg⁻¹)</i>	<i>$\dot{D}$ (nGy.h⁻¹)</i>	<i>%</i>
^{232}Th	25	16,6	38,8	157,9	104,5	65,6
^{238}U	25	10,7	25,0	40,6	17,3	10,8
^{40}K	370	15,5	36,2	874,7	37,6	23,6

*SELVASEKARAPANDIAN et al., 2000; %: contribuição.

Os resultados dos radionuclídeos estudados podem ser expressos em teores para cada elemento. A Tabela 22 apresenta as concentrações médias mundiais do ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K e os valores calculados nesse estudo. Esses valores também são utilizados para traçar o perfil radiométrico das áreas estudadas, sendo possível estimar os fatores de concentrações. Em média, a concentração do ^{232}Th é 5,3 vezes maior que a média mundial, a do ^{238}U , 1,2 e a do ^{40}K 2,6, considerando as amostras de solo.

Tabela 22. Concentrações de Th, U e K no solo e as médias mundiais.

<i>REFERENCIAL</i>	<i>CONCENTRAÇÃO (mg.kg⁻¹)</i>		
	<i>Th</i>	<i>U</i>	<i>K</i>
Presente estudo	39,3	3,3	3,4
Média mundial*	7,4	2,8	1,3

* UNSCEAR, 2000 apud Tzortzis; Tsertos, 2004.

Comparando a razão das concentrações obtidas no presente estudo com as médias mundiais apresentadas na tabela anterior, com os fatores de concentrações obtidos em razão das atividades específicas médias apresentadas na Tabela 21, observam-se pequenas diferenças entre os resultados finais. Parte dessas diferenças deve-se aos fatores de conversões aplicados aos valores das atividades para obter os resultados dos teores desses radionuclídeos, porém, constata-se que essas razões são consideradas estatisticamente semelhantes.

Na Tabela 23, os cálculos foram realizados para as rochas graníticas e cálcio-silicáticas anfíbolíticas. Para os granitos estudados no presente trabalho, verificou-se uma maior contribuição para a taxa de dose de radiação gama natural absorvida devida ao ^{40}K

com 47,1%. Os dados literários mostram uma maior contribuição do ^{232}Th nesse tipo de rocha (43,5%). Esse estudo apresentou uma menor influência percentual para a taxa de dose do ^{238}U na exposição total (17,8%), comparado com 16,1 % para a média mundial apresentada por Eisenbud; Gesell, (1997). A concordância das contribuições referentes às taxas de doses absorvidas na área de estudo, calculadas para ^{232}Th , ^{232}U e ^{40}K , são ligeiramente diferentes em termos percentuais para as amostras de solo e rochas graníticas. Nas rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, a contribuição é praticamente devida ao ^{238}U (99,2%) com apenas 0,8% devidos aos elementos da série do ^{232}Th .

A Tabela 24 relaciona os valores de doses típicas calculados para radiação de fundo natural e os valores elevados, segundo observados pela UNSCEAR (1993) apud Scheibel (2006). Observa-se que uma taxa de dose ambiental total para o “background” superior a $2,4 \text{ mSv.a}^{-1}$ é considerada fora dos limites aceitáveis .

Tabela 23. Atividades e contribuição do ^{232}Th , ^{238}U e ^{40}K nas rochas para a taxa de dose absorvida.

<i>Nuclídeo</i>	<i>Média mundial*</i>			<i>Presente estudo</i>					
	<i>Rochas Graníticas</i>			<i>Rochas Graníticas</i>			<i>Rochas cálcio-silicáticas</i>		
	<i>A (Bq.kg⁻¹)</i>	<i>$\dot{D}$ (nGy.h⁻¹)</i>	<i>%</i>	<i>A (Bq.kg⁻¹)</i>	<i>$\dot{D}$ (nGy.h⁻¹)</i>	<i>%</i>	<i>A (Bq.kg⁻¹)</i>	<i>$\dot{D}$ (nGy.h⁻¹)</i>	<i>%</i>
^{232}Th	70	46,3	43,5	35,3	23,4	35,1	179,7	119,0	0,8
^{238}U	40	17,1	16,1	27,9	11,9	17,8	34.115,6	14.567,4	99,2
^{40}K	~1.000	43,0	40,4	729,2	31,4	47,1	0,0	0,0	0,0

*EISENBUD; GESELL, 1997; A: Atividade; $\dot{D}$: Taxa de dose absorvida.

Tabela 24. Doses de radiação gama natural estimadas pela UNSCEAR.

<i>ORIGEM</i>	<i>VALOR TÍPICO (mSv.a⁻¹)</i>	<i>VALOR ELEVADO (mSv.a⁻¹)</i>
Raios- γ de origem terrestre	0,46	4,3
Rns. cosmogênicos	0,01	---
Rns. internos	0,23	0,6
Radiação cósmica	0,38	2,0
Devido ao ^{222}Rn e filhos	1,20	10,0
Devido ao ^{220}Rn e filhos	0,07	0,1
Devido a ingestão de Rn	0,005	0,1
Total (background)	2,4	---

5 CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES

- (A) As análises modal e microscópica realizadas em amostras de rochas permitem identificar halos metamictos que provocam a isotropização dos minerais presentes, e classificar as rochas anômalas como sendo cálcio-silicáticas anfíbolíticas.
- (B) Os estudos difratométricos realizados nas amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, indicam a presença de uraninita parcialmente oxidada, além de outros minerais como plagioclásio, piroxênio, anfíbólio, maghemita e apatita.
- (C) A análise dos espectros gama permite a identificação qualitativa dos radionuclídeos presentes nas amostras de rochas e de solo como sendo das séries do ^{238}U , do ^{232}Th e o ^{40}K .
- (D) As rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas apresentam as maiores concentrações específicas de ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th . Para o ^{40}K , os níveis ficaram abaixo do limite de detecção.
- (E) Não há diferença significativa entre as atividades específicas médias do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e do ^{40}K nas amostras de rochas graníticas e nos solos analisados.
- (F) A presença do ^{232}Th e principalmente do ^{40}K no solo dessa área é atribuída ao intemperismo das rochas graníticas, que são abundantes na região do agreste semi-árido de Pernambuco, sendo este tipo de rocha considerada a fonte que fornece esses radionuclídeos para o meio ambiente.
- (G) O ^{238}U apresentau-se concentrado ao redor das rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, enquanto que o ^{232}Th e o ^{40}K estão distribuídos ao longo de toda área.
- (H) A análise do pH nas amostras, associada ao clima da região e aos resultados da razão Th/U, propõe que o urânio disponível encontra-se na forma de UO_2^{2+} , com baixa mobilidade no solo e sua forma concentrada em rochas, estando pouco disponível para migração.
- (I) Os maiores valores para o rádio equivalente foram estimados nos afloramentos das rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas das fazendas F1 e F2.

- (J) Nas áreas do municípios de Pedra e Venturosa que possuem anomalias naturais de urânio e tório, a taxa de dose de radiação gama natural ultrapassa quarenta e três vezes os limites recomendados para indivíduos do público.
- (K) Devem ser tomadas medidas reguladoras e preventivas, tais como: isolar os afloramentos das fazendas F1 e F2, de forma que não desenvolvam atividades agrícolas ou moradias próximo a essas localidades, com a finalidade de proteger os residentes dessas áreas contra os possíveis efeitos causados pela exposição externa à radiação gama natural de forma direta ou pela transferência via cadeia alimentar.
- (L) Devido aos valores elevados para a taxa de dose de radiação gama natural nas áreas anômalas dos municípios de Pedra e Venturosa, recomenda-se uma avaliação citogenética dos indivíduos residentes próximos a essas áreas, com o objetivo de realizar um estudo mais completo sobre os efeitos da radiação ionizante nesses indivíduos.
- (M) Os estudos radiométricos associados aos estudos geoquímicos do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K servirão de base para construção de um banco de dados eficiente na avaliação dos níveis de radioatividade natural a nível mundial.

REFERÊNCIAS

AIETA, E. M.; SINGLEY, J. E.; TRUSSELL, A. R.; THORBJARNARSON, K. W.; MCGUIRE, M. Radionuclides in drinking water: an overview. **Research and Technology**. v. 189, p.144-152, 1987.

AKYIL, S.; ASLANI, M. A. A.; GURBOGA, G.; AYTAS, S.; ERAL, M. Activity concentration of radium-226 in agricultural soils. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 254, n. 1, p. 9-14, 2002.

ALMEIDA, M. G. **Estudo para o aproveitamento do urânio como subproduto da fosforita do Nordeste brasileiro**. 1974. 78p. Dissertação (Mestrado em Química), Instituto de Química, Universidade de São Paulo, São Paulo. 1974.

AMARAL, R. S. **Determinação de urânio na fosforita por meio de medidas radiométricas e análise por ativação**. 1987. 109p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1987.

ANJOS, R. M.; VEIGA, R.; SOARES, T.; SANTOS, A. M. A.; AGUIAR, J. G.; FRASCÁ, M. H. B. O.; BRAGE, J. A. P.; UZÊDA, D.; MANGIA, L.; FACURE, A.; MOSQUERA, B.; CARVALHO, C.; GOMES, P. R. S. Natural radionuclide distribution in Brazilian commercial granites. **Radiation Measurements**. v. 39, p. 245-253, 2005.

ARAFA, W. Specific activity and hazards of granite samples collected from the Eastern Desert of Egypt. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 75, p. 315-327, 2004.

ARANGO, H. G. **Bioestatística: teórica e computacional**. Rio de Janeiro: GEN, 2 ed., 2005, 423 p.

ARGENTIÉRE, R. **Urânio e tório no Brasil: Introdução à física nuclear aplicada**. São Paulo: LEP, 1954. 555 p.

BOLIVAR, J. P.; GARCÍA-TENORIO, R.; GARCÍA-LEÓN, M. A method for the determination of counting efficiencies in γ -spectrometric measurements with HPGe detectors. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A**. v. 382, p. 495-502, 1996.

CAMARGO, F. de. **Fatores que influenciam a resolução em energia na espectrometria de partículas alfa com diodos de Si**. 2005. 124 p. Dissertação (Mestrado em Pesquisas Energéticas e Nucleares), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2005.

CANBERRA. **The system 100 user's manual**. Version 3.0. [S.I.]: Canberra, 1990. Paginação irregular.

CARDOSO, J. J. R. F. Os migmatitos e os aspectos geológicos gerais da área correspondente a Folha Venturosa (PE). In: Congresso Brasileiro de Geologia, XXX. 1978 Recife. **Anais**. Recife: Sociedade Brasileira de Geologia, v. 3, 1978, p. 1232-1235.

CARLOS, D. U. **Desenvolvimento e construção de blocos de concreto radioativo para a calibração de espectrômetros gama portáteis e aerotransportados, utilizados em exploração mineral e de hidrocarbonetos**. 2006. 92p. Dissertação (Mestrado Ciências Geofísicas), Instituto de Astronomia Geofísica e Ciências Atmosféricas, Universidade de São Paulo, São Paulo. 2006.

CHOUAK, A.; VUISTER, P.; PAIC, G.; CSIKAI, J. Determination of U and Ra in rock samples by gamma-spectrometric method. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 45, p. 445-451, 1978.

CNEN/DNPM - COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR / DEPARTAMENTO NACIONAL DE PRODUÇÃO MINERAL. **Projeto recursos de urânio nos fosforitos do Nordeste**. Rio de Janeiro, 1985. Relatório técnico.

COSTA, A. C.; PEDROSA, I. L.; MENDES, V. A. **Projeto Agreste de Pernambuco**. Convênio DNPM/CPRM. 1976.

CRESPO, A. A. **Estatística fácil**. São Paulo: Saraiva, 17. ed., 1999. 224 p.

DANA, J. D. **Manual de Mineralogia**. Tradução: Rui Ribeiro Franco. v. 1. Rio de Janeiro: LTC, 1986. 642 p.

DIMOVA, N.; KINOVA, L.; VELEVA, B.; SLAVCHEV, B. Radiochemical procedures for determination of naturally occurred uranium isotopes in environmental samples. **Geology and Geophysics**. v. 46, p. 241-246, 2003.

EGGEBERT-SEELMANN, W.; PFENNIG, G.; MÜNZEL, H. **Kuklidkarte**: Chart of the nuclides. 4 ed. Auflage: Institut für Radiochemie, 1974. 28 p.

EISENBUD, M.; GESELL, T. **Environmental Radioactivity**: from natural, industrial, and military sources. New York: Academic Press, 1997. 656 p.

ERDTMANN G.; SOYKA W. The gamma of the radionuclides: tables for applied gamma Ray spectrometry. v. 7. New York: Verlag Chemie, 1979. 862 p.

FILHO, J. S.; ANDRADE, V. A. **Comentários sobre a avaliação Fotogeológica da Área do Projeto Venturosa**. NUCLEBRÁS/EFOR.PM. 1988.

FIRESTONE, R.B.; SHIRLEY, V.S.; CHU, S.Y.F.; BAGLIN, C. M. ZIPKIN, J. Table of isotopes. U.S.: Wiley-Interscience. Versão 1.0, **CD ROM**, 1996, 14.193 p.

FLORES, O. B.; ESTRADA, A. M.; ZERQUERA, J. T. Natural radioactivity in some building materials in Cuba and their contribution to the indoor gamma dose rate. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 113, n. 2, p. 218-222, 2005.

GODOY, M. O. **A detecção da radiação**: comunicações, n. 124-BC-62. Recife: DEN-UFPE, 1990. 10 p.

GONSALVES, A. D. Elementos químicos componentes dos minerais radioativos e das terras raras. In: GONSALVES, A. D. **Átomo e força atômica. Recursos do Brasil. Energia Nuclear. Minerais radioativos e compostos das terras raras**. Rio de Janeiro: Fundo de Cultura, 1959. p. 141-301.

HICKOX, W. H. Uranium: Public health goals for chemicals in drinking water. **Agency Secretary: California Environmental Protection Agency**. 30 p, aug. 2001.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). Measurements of radionuclides in food and the environ, **Technical Reports Series 295**, Vienna, 1989.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). X ray and gamma-ray standards for detector calibration. IAEA publication, technical report: **TECDOC 619**, INSS 1011-4289, Vienna, 1991. 157p.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in temperate environments. **Technical Reports Series 364**, 1994.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). IAEA Safety Standards Series: Advisory Material for the IAEA Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material. **Safety Guide No TS-G-1.1 (ST-2)**, Vienna, 2002. 387 p.

JOHNSON, J. E.; WARD, G. M.; ENNIS Jr., M. E.; BOAMAH, K. N. Transfer coefficients of selected radionuclides to animal products. Comparison of milk and meat from dairy cows and goats. **Health Physics**, v. 54, n. 5, p. 161-166, 1988.

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

KARANGELOS, D. J.; ANAGNOSTAKIS, M. J.; HINIS, E. P.; SIMOPOULOS, S. E.; ZUNIC, Z. S. Determination of depleted uranium in environmental samples by gamma-spectroscopic techniques. **Journal Environmental Radioactivity**. v. 76, p. 295-310, 2004.

KIMBLE, G. H. T.; SINCLAIR, M. H. The occurrence of uranium. **Nucleonics**. p. 48-51, April, 1950.

KIN, K. H.; BURNETT, W. C. **γ -Ray Spectrometric Determination of Uranium-Series Nuclides in Marine Phosphorites**. Tallahassee, Department of Oceanography, Florida, 1796-1800, 1983.

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and easurement**. 2 ed. New York: John Wiley & Sons, 1989, 754 p.

LEE, C.; LEE, K. A study on the radiometric method for the determination of uranium and thorium in ores. **Journal of the Korcan Nuclear Society**. v. 12, n.2, p. 106-110, 1980.

LITAOR , M. I. Uranium isotopes distribution in soils at the rocky flats plant, Colorado. **Journal of Environmental Quality** v. 24, p. 314-323, 1995.

MAGALHÃES, C. A. P. **Projeto Venturosa: Estudos Geológicos e Radiométricos na Folha Venturosa - Área I, Sub-Área F**. 1977. 49 p. Relatório de Conclusão de Curso (Graduação em Geologia) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1977.

MALANCA, A.; PESSINA, V.; DALLARA, G. Assessement of the natural radioactivity in the Brazilian State of Rio Grande do Norte. **Health Physics**. v. 65, n. 3, p. 298-302, 1993.

MCAULAY, I. R.; MORAN, D. Natural radioactivity in soil in the republic of Ireland. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 24, n. ¼, p. 47-49, 1988.

MCKEE, B. A.; DEMASTER, D. J.; NITTROUER, C. A. Uranium geochemistry on the Amazon shelf: Evidence for uranium release from bottom sediments. **Geochimica et Cosmochimica Acta**. v. 51, p. 2779-2786, 1987.

MENDONÇA, J. C. G. S. **Análise dos Relatórios do Projeto Venturosa com vistas à Retomada dos Trabalhos de Avaliação**. NUCLEBRÁS/EFOR.PM (Rel. Inédito, 8 p.), 1987.

MYRICK, T. E.; BERVEN, B. A.; HAYWOOD, F. F. Determination of concentrations of selected radionuclides in surface soil in the U. S. **Health Physics**. v. 45, n. 3, september, p. 631-642, 1983.

PAIĆ, G.; REGGOUG, A.; PAIĆ, A.; CHOUAK, A. Absolute measurement of the Ra/U ratio in uranium ores using a hyperpure germanium detector. **Journal of Applied Radiation and Isotopes**. v. 33, p. 1.389-1.392, 1982.

PAPACHRISTODOULOU, C. A.; ASSIMAKOPOULOS, P. A.; PATRONIS, N. E.; IOANNIDES, K. G. Use of HPGe γ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 64, p. 195-203, 2003.

PAPP, Z.; DEZSO, Z.; DARÓCZY, S. Measurement of the radioactivity of ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{137}Cs e ^{40}K in soil using direct Ge(Li) γ -ray spectrometry. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 222, n. 1-2, p.171-176, 1997.

PAVLIDOU, S.; KORONEOS, A.; PAPASTEFANOU, C.; CHRISTOFIDES, G.; STOULOS, S.; VAVELIDES, M. Natural radioactivity of granites used as building materials. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 89, p. 48 – 620, 2006.

PETRASCHECK, W. E. **Lagerstättenlehre**. Viena: Springer, 1961. 374 p.

PETRASCHECK; W. E.; POHL, W. **Lagerstättenlehre**. 3 ed. Stuttgart-Deutschland: E. Schweizerbart'sche, 1982. 341 p.

PEIXOTO, C. M.; AULER, L. M. L. A.; FONSECA, R. C. M. Interferência do K-40 na atividade beta total em amostras ambientais. In: X ENFIR (Encontro de Física de Reatores e Termo-hidráulica - III ENAN (Encontro de Aplicações Nucleares), 1., 1995, Águas de Lindóia, SP, Brasil. **Anais**. Belo Horizonte: CNEN, 1995. p. 280-285.

PIRES, A. C. B. Identificação geofísica de áreas de alteração hidrotermal, Crixás - Guarinos, Goiás. **Revista Brasileira de Geociências**. v. 25, n.1, p. 61-68, 1995.

PRODEEM - Programa de Desenvolvimento Energético dos Estados e Municípios; CPRM - Companhia de Pesquisas e Recursos Minerais - Serviço Geológico do Brasil. **Projeto cadastro de fontes de abastecimento por água subterrânea no Estado de Pernambuco** - Diagnóstico do Município de Pedra. 2005, 22 p.

RANKAMA, K.; SAHAMA, T. G. **Geochemistry**. Chicago: The University of Chicago, Press, 1950. 911 p.

RÓDENAS, J.; PASCUAL, A.; ZARZA, I.; SERRADELL, V.; ORTIZ, J.; BALLESTEROS, L. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. v. 496, p. 390-399, 2003.

ROSE, A. W.; HAWKES, H. E.; WEBB, J. S. **Geochemistry in mineral exploration**. 2 ed. London - New York: Academic Press, 1979. 657 p.

SANSONE, U.; STELLATO, L.; JIA, G.; ROSAMILIA, S.; GAUDINO, S.; BARBIZZI, S.; BELLI, M. Levels of depleted uranium in Kosovo soils. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 97, n.4, p. 317-320, 2001.

SANTOS JÚNIOR J. A. **Migração de urânio e rádio-226 no solo em torno da ocorrência uranífera do município de Pedra - PE**. 2005. 89p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2005.

SANTOS JÚNIOR, J. A.; CARDOSO, J. J. R. F.; AMARAL, R. S. Anomalias de urânio em rocha cálcio-silicática anfíbolítica no agreste do estado de Pernambuco, Brasil. **Revista Brasileira de Pesquisa e Desenvolvimento**. v. 7, n. 3, p. 291-298, 2005a.

SANTOS JÚNIOR., J. A.; CARDOSO, J. J. R. F.; SILVA, C. M.; SILVEIRA, S. V.; AMARAL, R. S. Analysis of the ^{40}K levels in soil using gamma spectrometry. **Brazilian Archives of Biology and Technology**. v. 48, p. 221-228, oct. 2005b.

SANTOS JÚNIOR., J. A.; CARDOSO, J. J. R. F.; SILVA, C. M.; SILVEIRA, S. V.; AMARAL, R. S. Determination of radionuclides in the environment using gamma-spectrometry. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 269, n. 2, p. 451-455, 2006.

SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C.; BEZERRA, J. D. Radium-228 as an indicator of Thorium-232 presence in a soil in Pernambuco, Brazil. **Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology**. v. 82, p. 650-652, 2009a.

SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C.; BEZERRA, J. D. Estudo comparativo entre os detectores HPGe e NaI(Tl) na determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo. **Scientia Plena**. v. 5, N. 4, p. 1-16, 2009b.

SANTOS, R. N.; MARQUES, L. S. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ and $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ activity ratios of Cameroon volcanic line: investigation of secular radioactive disequilibrium in the ^{238}U and ^{232}Th decay series. In: South American Symposium on Isotope Geology, 4., 2003, Salvador. **Anais**. Salvador: CBPM; IRD, 2003. p. 675-678.

SCHEIBEL, V. **Determinação das doses efetivas por ingestão de farinhas de cereais através da espectrometria de raios gama**. 2006. 159p. Tese (Doutorado em Física), Departamento de Física, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2006.

SCHEIBEL, V.; APPOLONI, C. R. Medida de traços radioativos em alimentos de exportação do Paraná. In: International Nuclear Atlantic Conference – INAC, IV National Meeting on Nuclear Applications, 2002, Rio de Janeiro, RJ, Brazil. **CD ROM**. São Paulo: ABEN – CNEN – IPEN – Fábrica da Imagem Interativa, 2002.

SCHEID, C. **Projeto Garanhuns, reconhecimento radiogeológico**. Recife: CPRM/NUCLEBRÁS, 1975. (Relatório final).

SCHULZ, R. K. Soil chemistry of radionuclides. **Health Physics**. v. 11, p. 1317-1324, 1965.

SERVIÇO DE APOIO ÀS MICRO E PEQUENAS EMPRESAS DE PERNAMBUCO (SEBRAE). **Cadeia produtiva de leite em Pernambuco**. Recife, Edição SEBRAE, 2002, p. 32.

SELVASEKARAPANDIAN, S.; SIVAKUMAR, R.; MANIKANDAN, N. M.; MEENAKSHISUNDARAM, V.; RAGHUNATH, V. M.; GAJENDRAN, V. Natural radionuclide distribution in soil of Gudalore, India. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 52, p. 299-306, 2000.

SHENBER, M. A. Measurement of natural radioactivity levels in soil in Tripoli. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 48, p. 147-148, 1997.

SINGH, A. K.; SINGH, A.; ENGELHARDT, M. The lognormal distribution in environmental applications. **Technology Support Center Issue**, EPA/600/R-97/006. 1997.

SILVA, P. S. C.; MAZZILLI, B. P. U and Th series nuclides in Cubatão River sediments. In: International Conference on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences, 8, 2005, Rio de Janeiro. **Anais**. Rio de Janeiro: CENA/USP, 2005. p. 114.

SUJO, L. C.; CABRERA, M. E. M.; VILLALBA, L.; VILLALOBOS, M. R.; MOYE, E. T.; LEÓN, M. G.; GARCIA-TENORIO, R.; GARCÍA, F. M.; PERAZA, E. F. H.; AROCHE, D. S. Uranium-238 e thorium-232 series concentrations in soil, radon-222 indoor and drinking water concentrations and dose assessment in the city of Aldama, Chihuahua, Mexico. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 77, p. 205-219, 2004.

TAHIR, S. N. A.; JAMIL, K.; ZAIDI, J. H.; ARIF M.; AHMED, N.; AHMAD, S. A. Measurements of activity concentrations of naturally occurring radionuclides in soil samples from PUNJAB PROVINCE OF Pakistan an assessment of radiological hazards. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 113, n.4. p. 421-427, 2005.

TOLEDO, G. L.; OVALLE, I. I. **Estatística básica**. São Paulo: Atlas, 2 ed. 1983. 459 p.

TZORTZIS, M.; TSERTOS, H.; CHRISTOFIDES, S.; CHRISTODOULIDES, G. Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks. **Radiation Measurements**. v. 37, p. 221-229, 2003.

TZORTZIS, M.; TSERTOS, H. Determination of thorium, uranium and potassium elemental concentrations in surface soils in Cyprus. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 77, p. 325-338, 2004.

VIEIRA, S. **Análise de variância: ANOVA**. São Paulo: Atlas, 2006, 206 p.

WEDEPOHL, K. H. **Handbook of Geochemistry**. v. II/5. Berlin – New York: Springer, 1978. Paginação irregular.

YASIR, M. S.; MAJID, A. AB.; YAHAYA, R. Study of natural radionuclides and its radiation hazard index in Malaysian building materials. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. V. 273, n. 3, p. 539-541, 2007.

APÊNDICE A – Resultados dos testes estatísticos anova.

AMOSTRAS DE SOLO

(U238) -> (Ra226):

Dados	Média	Variância	N
U238	40,62419	979,7517	62
Ra226	26,07097	140,43062	62

F = 11,72253
p = 8,41414E-4

Nível de incerteza de 0,05;
As médias são significativamente diferentes.

(U238) -> (Th232):

Dados	Média	Variância	N
U238	40,62419	979,7517	62
Th232	157,88065	7234,78454	62

F = 103,77247
p = 0

Nível de incerteza de 0,05;
As médias são significativamente diferentes.

(U238) -> (K40):

Dados	Média	Variância	N
U238	40,62419	979,7517	62
K40	874,6871	136964,57918	62

F = 312,66945
p = 0

Nível de incerteza de 0,05;
As médias são significativamente diferentes.

(Ra226) -> (Th232):

Dados	Média	Variância	N
Ra226	26,07097	140,43062	62
Th232	157,88065	7234,78454	62

F = 146,05337
p = 0

Nível de incerteza de 0,05;
As médias são significativamente diferentes.

(Ra226) -> (K40):

Dados	Média	Variância	N
Ra226	26,07097	140,43062	62
K40	874,6871	136964,57918	62

F = 325,65738

p = 0

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

(Th232) -> (K40):

Dados	Média	Variância	N
Th232	157,88065	7234,78454	62
K40	874,6871	136964,57918	62

F = 220,91854

p = 0

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

AMOSTRAS DE ROCHA

(U238) -> (Ra226):

Dados	Média	Variância	N
U238	24,79231	144,24077	13
Ra226	20,73846	242,59923	13

F = 0,55226

p = 0,46461

Nível de incerteza de 0,05;

As médias não são significativamente diferentes.

(U238) -> (Th232):

Dados	Média	Variância	N
U238	24,79231	144,24077	13
Th232	171,08462	87014,90474	13

F = 3,19208

p = 0,08664

Nível de incerteza de 0,05;

As médias não são significativamente diferentes.

(U238) -> (K40):

Dados	Média	Variância	N
U238	24,79231	144,24077	13
K40	806,24615	409289,22269	13

F = 19,3895

p = 1,8939E-4

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

(Ra226) -> (Th232):

Dados	Média	Variância	N
Ra226	20,73846	242,59923	13
Th232	171,08462	87014,90474	13

F = 3,36764

p = 0,07891

Nível de incerteza de 0,05;

As médias não são significativamente diferentes.

(Ra226) -> (K40):

Dados	Média	Variância	N
Ra226	20,73846	242,59923	13
K40	806,24615	409289,22269	13

F = 19,58649

p = 1,78942E-4

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

(Th232) -> (K40):

Dados	Média	Variância	N
Th232	171,08462	87014,90474	13
K40	806,24615	409289,22269	13

F = 10,5673

p = 0,0034

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

AMOSTRAS DE ROCHAS ANÔMALAS

(U238) -> (Ra226):

Dados	Média	Variância	N
U238	39029,08	9,51677E8	5
Ra226	69430,06	2,90264E9	5

F = 1,19894

p = 0,3054

Nível de incerteza de 0,05;

As médias não são significativamente diferentes.

(U232) -> (Th232):

Dados	Média	Variância	N
U232	39029,08	9,51677E8	5
Th232	485,6	630962,01	5

F = 7,8

p = 0,02346

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

(Ra226) -> (Th232):

Dados	Média	Variância	N
Ra226	69430,06	2,90264E9	5
Th232	485,6	630962,01	5

F = 8,18618

p = 0,02111

Nível de incerteza de 0,05;

As médias são significativamente diferentes.

APÊNDICE B – Trabalhos publicados

SANTOS JÚNIOR., J. A.; CARDOSO, J. J. R. F.; SILVA, C. M.; SILVEIRA, S. V.; AMARAL, R. S. Analysis of the ^{40}K levels in soil using gamma spectrometry. **Brazilian Archives of Biology and Technology**. v. 48, p. 221-228, oct. 2005.

SANTOS JÚNIOR., J. A.; CARDOSO, J. J. R. F.; SILVA, C. M.; SILVEIRA, S. V.; AMARAL, R. S. Determination of radionuclides in the environment using gamma-spectrometry. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 269, n. 2, p. 451-455, 2006.

SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C.; BEZERRA, J. D. Radium-228 as an indicator of Thorium-232 presence in a soil in Pernambuco, Brazil. **Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology**. v. 82, p. 650-652, 2009.

SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C.; BEZERRA, J. D. Estudo comparativo entre os detectores HPGe e NaI(Tl) na determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo. **Scientia Plena**. v. 5, N. 4, p. 1-16, 2009.

Analysis of the ^{40}K Levels in Soil using Gamma Spectrometry

José Araújo dos Santos Júnior^{1*}, Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso^{1,2}, Cleomacio Miguel da Silva¹, Suêlto Vita Silveira¹ and Romilton dos Santos Amaral¹

¹Grupo de Estudos em Radioproteção e Radioecologia (GERAR); Department of Nuclear Energy; Federal University of Pernambuco; Av. Prof. Luiz Freire, 1000; Cidade Universitária; 50740-540; jaraújo@ufpe.br; Recife - PE - Brasil.

²Department of Geology; Federal University of Pernambuco; Av. Acadêmico Hélio Ramos, s/n; Cidade Universitária; 50740-530; jcardoso@ufpe.br; Recife - PE - Brasil

ABSTRACT

Potassium-40 was determined in soil in an area with 40,000 m² situated in the western State of Pernambuco, Brazil. For radiometric measurements, the gamma spectrometry method with a high purity germanium (HPGe) detector was used. Sampling of 78 soil samples has been performed at intervals of 25 m. The specific activities of ^{40}K were calculated based on the photopeak of 1.46 MeV. Values from 541 to 3,572 Bq kg⁻¹ were obtained (mean of 1,827 Bq kg⁻¹). These values allowed the determination of the elemental concentrations as well as the absorbed dose rates in air, 1 m above the ground. The values varied from 1.7 to 11.5% (mean of 6%) and from 23.4 to 154.3 nGy h⁻¹ (mean of 79 nGy h⁻¹), respectively.

Key words: ^{40}K in soil; ^{40}K gamma spectrometry; ^{40}K in environmental radiological protection.

INTRODUCTION

The Brazilian Northeast region, despite its interesting geological structure (Malanca et al., 1993), has not been sufficiently explored in terms of environmental radiological studies. Since 1974, the Brazilian Nuclear Enterprise (NUCLEBRAS) performed geological and radiometric mapping studies in that region, where a small anomalous area of uranium was discovered in the Pernambuco sylvan. The first radiometric-geological studies occurred after an accord between NUCLEBRAS and the Federal University of Pernambuco (UFPE) in 1975 (Magalhães, 1977).

Natural environment radionuclides are responsible for the most of the external exposures of gamma radiation. This contribution is mainly due to the

radionuclides of the natural series ^{238}U , ^{235}U , and ^{232}Th , followed by ^{40}K , universally present in the Earth (Shenber, 1997; Tzortzis; Tsertos, 2004). The world mean specific concentration of ^{40}K (activity per unit soil mass) is 370 Bq kg⁻¹, varying from 100 to 700 Bq kg⁻¹ (Mcaulay; Moran, 1988). Radioactivity levels of the environment depend on geological aspects, mainly on rocks and soil, where they are found in varying concentrations (Tzortzis; Tsertos, 2004).

The average absorbed dose rate in air at a 1 m distance from the ^{40}K source is 15.54 nGy h⁻¹ (Selvasekarapandian et al., 2000). The United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR (1993), establish that, the world mean dose from natural radiation sources of normal areas is estimated to be 2.4

* Author for correspondence

mSv.a⁻¹, while that for all man-made sources, including medical exposure, is about 0.8 mSv.a⁻¹ (Ghiassi-Nejad et al., 2001). Thus, 75% of the radiation dose received by humanity is come from natural radiation sources. Based on these radiation levels, one can certify that the knowledge of primordial radionuclides, such ²³⁸U, ²³²Th, ⁴⁰K and ⁸⁷Rb, is an important pre-requisite for evaluation of the rate of exposure and the absorbed dose by the population (Kannan et al., 2002). This knowledge ensures radiological control, since a predominant part of the environmental radiation is found in the upper soil layer (Kannan et al., 2002). Potassium is an essential element of human metabolism and can be found in all living cells, mainly in the muscular tissue. Natural potassium is composed of three isotopes: ³⁹K, ⁴⁰K and ⁴¹K, of which only ⁴⁰K is radioactive. This radionuclide occurs at the approximate abundance of 0.012% in relation to the whole mass of potassium (Pires, 1995). ⁴⁰K has a half-life of 1.28 x 10⁹ years and is a beta and gamma emitter (89% and 11% of its radiation, respectively) with respective energies of 1.3 MeV and 1.46 MeV (Peixoto et al., 1995; Erdtmann; Soyka, 1979). The relevance of the potassium-40 study is mainly due to its long half-life, its importance for living organisms with a uniform distribution, and because it is responsible for 98% of the gamma emission of the primordial radionuclides present in the earth. The present work is important because there is no reference regarding the area concerning the ⁴⁰K concentrations in the soil, which were found to be high.

MATERIALS AND METHODS

Sampling and preparation

The soil samples were collected in an area of approximately 40,000 m², located in the Sylvan region of the state of Pernambuco, Brazil (Fig.1). The sampling was carried out at 25 m intervals, and the samples were collected from the C horizon (average depth of 35 cm), mainly due to the kind of climate. In the laboratory, the samples were dried, sieved at a granulometry lower than 63 µm and homogenized. Each sample of 200 grams was stored in standardized polyethylene containers.

Measure of the radioactivity

The activities of the ⁴⁰K in the soil were determined by gamma spectrometry HPGe of 4.54 cm of diameter, active volume of 41.1 cm³, and efficiency of 27%, coupled to a Canberra MCA (multi-channel analyzer) with 8,192 channels. This system presented a resolution of 1.77 keV in 1,332 keV for ⁶⁰Co. To reduce the background effect, the detector was enveloped by nearly 6.5 cm lead covering. The measurement time for each sample was standardized at 43,200 seconds (12 hours).

The counting efficiency of ⁴⁰K in the energy of approximately 1.46 MeV was determined with ¹⁵²Eu, multi-gamma emitting, with energies varying from 39 keV to 2 MeV, certified by the Institute for Radioprotection and Dosimetry (IRD), Rio de Janeiro, Brazil. Based on the calculations of the counting efficiency of the ¹⁵²Eu standard, it was possible to calculate the specific activities of the potassium 40, with the energy 1.46 MeV, based on equation 1 (Tzortzis et al., 2003):

$$A = \frac{C}{\epsilon \times \gamma \times m \times t} \quad (1)$$

where A is the specific activity of the radionuclide (Bq kg⁻¹); C is the liquid count; ε the counting efficiency; γ the percentage of gamma emission probability of the radionuclide under consideration; t the counting time (s) and m the mass of the sample (kg).

Using the above equation, it was possible to calculate the specific activities of the ⁴⁰K in the study area through the energy of 1.46 MeV. For the detection limit calculation (LD), equation 2 was used, where the factor 4.66 corresponded to one level of confidence of 95% (Silva; Mazzilli, 2005).

$$LD = \frac{4.66\sqrt{C}}{\epsilon \times \gamma \times m \times t} \quad (2)$$

The parameters of equation 2 for the calculation of the LD were applied to the measurement of the background in the photopeak of 1.46 MeV of the ⁴⁰K.

Calculation of elemental concentrations of ⁴⁰K

Through the measurement of the activities of potassium 40, calculated from its gamma emission in the photopeak of 1.46 MeV (equation 1), it was

possible to calculate the elemental concentrations reported in units of $\mu\text{g.g}^{-1}$, using equation 3 (Tzortzis; Tsertos, 2004).

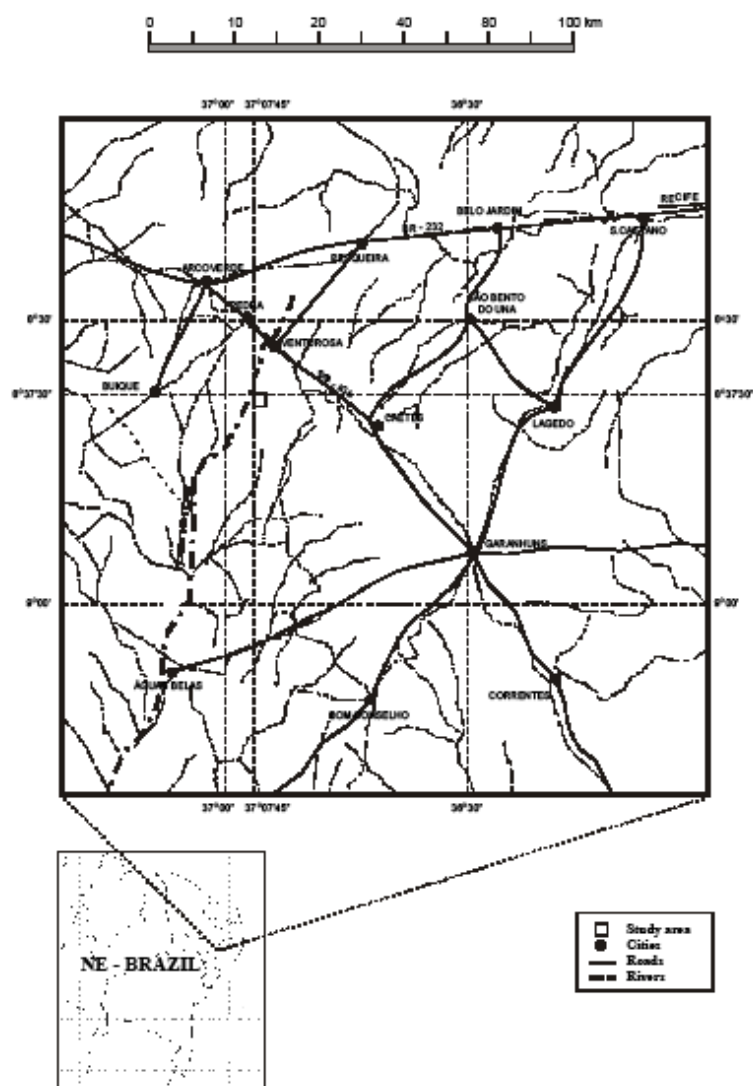


Figure 1 - Localization of the study area access routes.

$$F_E = \frac{M_E \times C}{\lambda_E \times N_A \times f_{A,E}} \times A_E \quad (3)$$

where F_E is the fraction of element E in the sample, M_E , λ_E , $f_{A,E}$ and A_E are the atomic mass (kg mol^{-1}), the radioactivity decay constant (s^{-1}), the fraction atomic abundance in nature and the measured activity concentration (Bq kg^{-1}), respectively, of the corresponding radionuclide considered (^{40}K), N_A is Avogadro's number (6.023×10^{23} atoms mol^{-1}), and C is a constant with a value of 100 for K. These elemental concentrations are presented in percentages for potassium.

Calculation of the absorbed dose in air

Equation 4, published in UNSCEAR (1988), was used to calculate the absorbed dose rate (D) in outdoor air at one meter above ground, proceeding from the gamma emissions of ^{40}K (Shenber, 1997; Selvasekarapandian et al., 2000; Kamman et al., 2002):

$$D = (4.32 \times 10^{-3} C_K) \times 10^{-8} \text{ Gy h}^{-1} \quad (4)$$

where C_K is the specific activity of ^{40}K (Bq kg^{-1}) and 10^{-8} is the conversion factor from the absorbed dose (D).

RESULTS AND DISCUSSION

The Figs. 2, 3 and 4 show the frequency distributions based on the calculations of the specific activities, elemental concentrations and absorbed dose rates in air 1 m above the ground surface, respectively, for the ^{40}K in the soil of the Sylvan region of the state of Pernambuco, Brazil. The non-parametric test of Kolmogorov-Smirnov at a reliability level of 95%, showed that the best distribution of these data for all the tests is the log-normal one, with asymmetry on the right.

The map of the activity distribution of the ^{40}K in the study area is shown in Fig. 5. The highest values obtained for the ^{40}K activities were determined in NE portion of the area, probably a result of the presence of granite and, consequently, higher elemental concentrations and absorbed doses.

The specific activities of ^{40}K in soil varied from 541 to 3,572 Bq kg^{-1} (mean 1,827 Bq kg^{-1}), with a detection limit of approximately 62 Bq kg^{-1} .

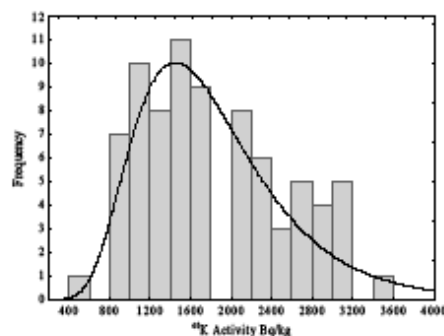


Figure 2 - Frequency distributions of ^{40}K (Bq kg^{-1}) in soil.

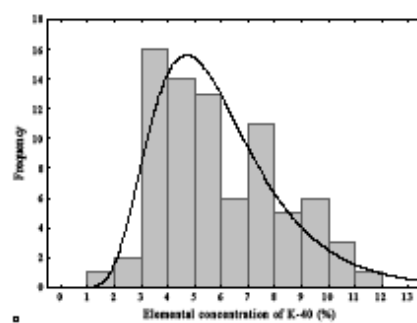
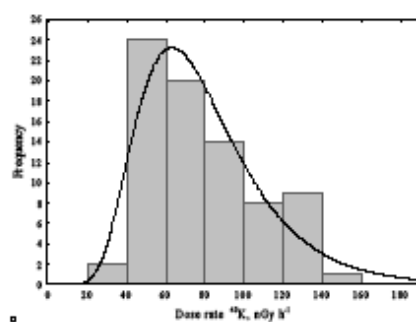
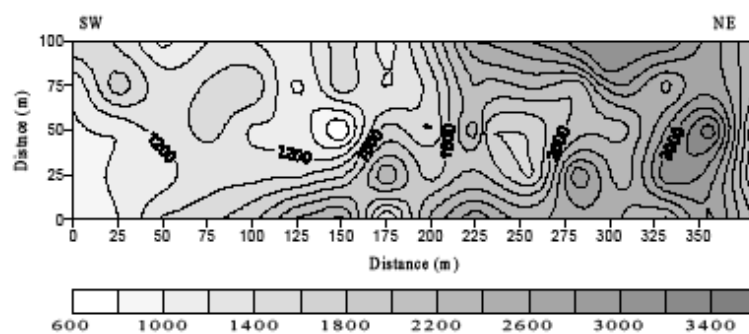
Figure 3 - Frequency distributions of ^{40}K (%) in soil.Figure 4 - Frequency distributions of ^{40}K (nGy h^{-1}) in soil.Figure 5 - Map of the activity distributions of ^{40}K (Bq kg^{-1}) in the study area.

Table 1 shows the statistical parameters obtained for ^{40}K in soil of the study area.

The elementary concentrations of ^{40}K varied from 1.7% to 11.5%, with a mean of approximately 6%. The worldwide average for the elemental concentration of ^{40}K in soil is 1.3%. The UNSCEAR 2000 report (Tzortzis; Tsertos, 2004), presents ^{40}K varying from 1.3 to 9, approximately (fc mean about 5). The absorbed doses in air 1 m above the surface were calculated using equation 4 UNSCEAR report (Shenber, 1997; Selvasekarapandian et al., 2000; Kannan et al., 2002), where values varying from 23.4 to 154.3 nGy h⁻¹, with a mean of 79 nGy h⁻¹, were obtained.

The elemental concentration of the ^{40}K in soil samples from work conducted in various

countries (Tzortzis; Tsertos, 2004) is presented in Table 2.

When the values for the concentrations of ^{40}K in the present study are compared with those obtained in other regions of the world, it can be seen that the ratio of the variations of the present study to those of Italy, Spain, India, Jordan and Cyprus are 0.9-4.6; 8.5-2.2; 8.5-23; 17-11.5; >1.7-6, respectively. Thus, only the minimum concentration of Italy (1.9) is higher than the minimum concentration in the present study (1.7). All the other elemental concentrations are lower.

The specific activities and absorbed doses in the air one meter above the ground for ^{40}K obtained from the study, and the work conducted in other regions, according to Tzortzis and Tsertos (2004) can be seen in Table 3.

Table 1 - Statistical data of ^{40}K in soil samples from the area of study.

Statistical	A(Bq kg ⁻¹)	[K](%)	D (nGy h ⁻¹)
Range	541-3,572	1.7-11.5	23.4-54.3
Arithmetic mean	1,827	5.9	78.9
Geometric mean	1,696	5.5	73.3
Median	1,662	5.3	71.8
Mode	1,250	4.0	54.0
Mean error (%)		4.2	
Skewness		0.481	
Kurtosis		-0.714	
Frequency		Log-normal	

[K] = elemental concentration of ^{40}K ; D = rate absorbed dose.

Table 2 - Elemental concentrations of ^{40}K in soil samples from the present study and studies conducted in other regions (Tzortzis; Tsertos, 2004).

Region	Range ^{40}K (%)
Pernambuco - Brazil	1.7 - 11.5
World average	1.3
Italy	1.9 - 2.5
Espanha	0.2 - 5.2
Rajasthan, India	0.2 - 0.5
Russaifa, Jordan	0.1 - 1.0
Cyprus	<1 - 1.9

Present study

Table 3 - Specific activities and absorbed doses in air at one meter above the ground for ^{40}K in different localities of the world.

Location	^{40}K		Reference
	Activity (Bq kg^{-1})	D (nGy h^{-1})	
PE-Brazil	1,827 (541-3,572)	79 (23.4-154.3)	present study
World *	370 (100-700)	15.54	Mcaulay; Moran, 1988
RN-Brazil	677.8 (56.4 -1,972)	29.3 (2.4-85.2)	Malanca et al., 1993
Tripoli	270 (265-282)	12 (11.4-12.5)	Shenber, 1997
Gudaloro-India	195.2 (77.5-595.9)	73 (27.5-203.9)	Selvasekarapandian et al., 2000
Kalpakkam-India	406 (200-854)	17.4 (9-37)	Kannan et al., 2002

* Worldwide average; PE = Pernambuco; RN = Rio Grande do Norte.

CONCLUSIONS

The results show that gamma spectrometry is an important tool for environmental monitoring of ^{40}K . By this method, the distribution the elemental concentration, as well as the absorbed dose in air, one meter above the ground surface, could be determined. The measured activities in the studied area are five fold higher than the world mean, and, consequently, the elemental concentrations and absorbed dose are five fold higher than the world average. The highest concentrations were found in the NE region of the area.

ACKNOWLEDGEMENTS

The authors thank the Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) for the scholarship; to Professor Suêlido Vita da Silveira (through FADE - Fundação de Apoio ao Desenvolvimento da Universidade Federal de Pernambuco) for the financial support; and Professor Carlos Adolpho M. Baltar for making the laboratory under his management available to us (Laboratory of Mineral Technology of the Federal University of Pernambuco).

RESUMO

A radioatividade do ^{40}K foi determinada em solo em uma área de aproximadamente 40.000 m² localizada no Estado de Pernambuco, Brasil. Para as medidas radiométricas foi usado o método de espectrometria gama com detector de germânio de alta pureza (HPGe). A amostragem perfaz um total de setenta e oito amostras de solo coletadas em intervalos de 25 m. As atividades específicas do ^{40}K foram calculadas com base no fotopico gama

de 1,46 MeV. Foram obtidos valores que variaram de 541 a 3.572 Bq kg^{-1} (média aritmética de 1.827 Bq kg^{-1}). Com base nestes cálculos, obteve-se concentrações elementares e doses absorvidas no ar a 1 m, derivadas da contribuição do ^{40}K no solo, onde os valores obtidos variaram respectivamente de 1,7 a 11,5% (média 6%) e 23,4 a 154,3 nGy h^{-1} (média 79 nGy h^{-1}).

REFERENCES

- Erdtmann, G. and Soyka, W. (1979), *The gamma of the radionuclides: tables for applied gamma ray spectrometry*. New York : Verlag Chemie.
- Ghiassi-Nejad, M.; Beitollahi, M. M.; Fallahian, N.; Amidi, J. and Ramezani, H. (2001), Concentrations of natural radionuclides in imported mineral substances. *Environment International*, 26, 557-560.
- Kannan, V.; Rajan, M. P.; Iyengar, M. A. R. and Ramesh, R. (2002), Distribution of natural and antropogenic radionuclides in soil and beach sand samples of Kalpakkam (India) using hyper pure germanium (HPGe) gamma ray spectrometry. *Applied Radiation and Isotopes*, 57, 109-119.
- Magalhães, C. A. P. (1977), *Projeto Venturosa: estudos geológicos e radiométricos na folha venturosa - área I, sub-área F. Monografia (Graduação)*, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, Brazil.
- Malanca, A.; Pessina, V. and Dallara, G. (1993), Assesment of the natural radioactivity in the Brazilian State of Rio Grande do Norte. *Health Physics*, 65, 298-302.
- Mcaulay, I. R. and Moran, D. (1988), Natural radioactivity in soil in the republic of Ireland, *Radiation Protection Dosimetry*, 24, 47-49.
- Peixoto C. M.; Auler, L. M. L. A. and Fonseca, R. C. M. (1995), Interferência do K^{40} na atividade beta total em amostras ambientais. In: Encontro de Física de Reatores e Termo-hidráulica, 10.; Encontro de Aplicações Nucleares, 3., Águas de Lindóia. *Proceedings...* Águas de Lindóia.

- Pires A. C. B. (1995), Identificação geofísica de áreas de alteração hidrotermal, Crixás-Guarinos, Goiás. *Revista Brasileira de Geociências*, 25, 61-68.
- Selvasekarapandian, S.; Sivakumar, R.; Manikandan, N. M.; Meenakshisundaram, V.; Raghunath, V. M. and Gajendran, V. (2000), Natural radionuclide distribution in soils of Gudalore, India. *Applied Radiation and Isotopes*, 52, 299-306.
- Shenber, M. A. (1997), Measurement of natural radioactivity levels in soil in Tripoli. *Applied Radiation and Isotopes*, 48, 147-148.
- Silva, P. S. C. and Mazzilli, B. P. (2005), U and Th series nuclides in Cubatão River sediments. In: International Conference on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences, 8., Abstract, Rio de Janeiro *Proceedings*... Rio de Janeiro, Brazil.
- Tzortzis, M. and Tsertos, H. (2004), Determination of thorium, uranium and potassium elemental concentrations in surface soils in Cyprus. *Journal of Environmental Radioactivity*, 27, 325-338.
- Tzortzis, M.; Tsertos, H.; Christofides, S. and Christodoulides, G. (2003), Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks. *Radiation Measurements*, 37, 221-229.

Received: July 05, 2005;

Revised: July 14, 2005;

Accepted: August 01, 2005.

Determination of radionuclides in the environment using gamma-spectrometry

J. A. S. Júnior,^{1*} J. J. R. F. Cardoso,^{1,2} C. M. Silva,¹ S. V. Silveira,¹ R. S. Amaral¹

¹ GERAR - Grupo de Estudos em Radioproteção e Radioecologia, Department of Nuclear Energy, Federal University of Pernambuco, Av. Prof. Luiz Freire, 1000, CDU, 50740-540, Recife, PE, Brazil

² Department of Geology, Federal University of Pernambuco, Av. Acadêmico Hélio Ramos s/n, CDU, 50740-530, Recife, PE, Brazil

(Received April 6, 2006)

Seventy nine samples, including soil and rock, were collected from the agrestic region of the State of Pernambuco, Brazil. The activity concentrations of ^{238}U and ^{226}Ra in the samples were determined by gamma-spectrometry using an HPGe detector. The concentrations of ^{238}U were 22 Bq·kg⁻¹ to 22 kBq·kg⁻¹. The concentrations of ^{226}Ra were 14 Bq·kg⁻¹ to 17 kBq·kg⁻¹. The $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ratios in the soil were 0.7 to 3.4 (arithmetic mean 1.7). The radiometric data were evaluated to explain ^{238}U and ^{226}Ra migration in the soil and the possible consequences to the environment.

Introduction

This work was based on radiometric mapping carried out by the Brazilian Nuclear Enterprises of NUCLEBRAS in 1975, which allowed the localization of radiometric anomalous areas, located near the town of Pedra, State of Pernambuco, Brazil.¹ The aim of this research was to evaluate the migration of ^{238}U and ^{226}Ra in one of those anomalous areas, in which the distribution of these elements was affected by man.

There is no estimation of uranium and radium distribution in this area. This distribution is due to the interperic and mainly anthropogenic actions. Thus, the control of environmental radioactivity is very important for the acquisition of information about potential sources of contamination in natural radioactivity occurrences, the knowledge of information about radionuclide concentrations in rocks and soil, being of fundamental importance for estimating the natural radiological risk coming from these isotopes.

Sampling was carried out in an area of approximately 40,000 m², where one of the main radiometric anomalies was located.

Natural radioactivity

Generally, environmental radioactivity, that is specifically predominant in soil, is derived from the decay of the primordial radionuclides of ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th , ^{87}Rb and ^{40}K . However, the highest contribution to this radioactivity is due to the great number of decay products of ^{238}U and ^{232}Th .²

Of the natural radioactive elements, the ones that present a good degree of mobility in the soil, are uranium (U^{6+}) and radon. All of these elements may be present in soils as cations, therefore, being able to be adsorbed on soil minerals. The degree of adsorption and desorption of these ions will depend on factors such as:

number of species of other ions present, type of clay minerals and the pH of the soil.³

Radium is a member of the group of alkaline-earth metals, oxidation state +2, and presents low mobility in aqueous solutions.⁴ On the other hand, uranium is found to be mobile in soil when in the divalent form, UO_2^{2+} .

Uranium

Uranium minerals are divided into two categories: primary and secondary minerals. The latter are formed primarily by the weathering action. Between primary and secondary, there are more than one hundred uranium minerals.⁵ Besides these, there are many others with high uranium content, that can be of economic interest. In all the uranium minerals, this element can be partially substituted by thorium and "rare earths".

Radium

Radium presents a radioactive power that is a million times higher than the radioactivity of uranium. It is found dispersed in nature, except in some areas that have higher natural radioactivity, such as volcanic rocks and in some uranium mining regions.⁶ Major concentrations of radium are found in mining areas that contain uranium and thorium minerals.

Though there are five isotopes of radium in the environment, the known: ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{225}Ra , ^{226}Ra and ^{228}Ra , the determination of ^{226}Ra and ^{228}Ra are the most important, especially in geochemical studies and human health effects.⁷

Experimental

Studied area

The studied area is situated in the municipality of Pedra, State of Pernambuco, Brazil (Fig. 1). For localization of the area the following were used:

* E-mail: jaraújo@ufpe.br

geological maps,¹ a GPS GARMIN, and a scintillation counter SAPHYMO SRAT, SPP-2-NF. Thus, it was possible to locate two small areas with amphibole bearing calc-silicate rock, measuring 250 cps ($0.102 \text{ mR}\cdot\text{h}^{-1}$) up to higher values than 15,000 cps ($>6 \text{ mR}\cdot\text{h}^{-1}$).

Sampling and preparation

Representative samples of the types of predominant rocks were collected: amphibole bearing calc-silicate and granite. The first, radiometric anomalous, was

mineralogically analyzed, and the samples were ground, homogenized, quartered, and sieved at a granulometrie lower than $148 \mu\text{m}$ (suitable for chemical and radiometric analyses).

The soil samples were collected in the C horizon, mainly due to the kind of climate, at intervals of 25 m. In the laboratory they were sieved at a granulometrie lower than $63 \mu\text{m}$, this fraction being used for analysis, because it contains all clay minerals.

After preparation, the material underwent radiometric analysis for the identification of specific concentrations of the natural radionuclides of interest.

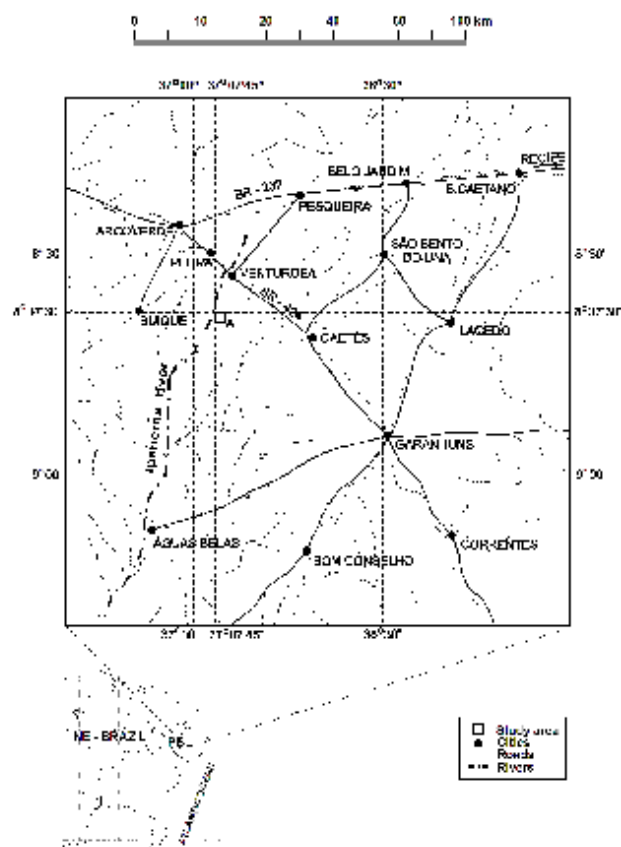


Fig. 1. Localization of the studied area (A)

Gamma-spectrometry

The measurement system is composed of an HPGe detector with an active volume of 41.1 cm³. This equipment has a resolution of 1.77 keV over 1,332 keV for ⁶⁰Co, and is coupled to a Canberra MCA (multi-channel analyzer) with 8,192-channels, as well as on a Genie PC Canberra software. To reduce the background effect, the detector is shielded by a lead cover nearly 6.5 cm thick.

For analysis, the samples were homogenized to obtain a uniform distribution of the present matters, and stored in hermetically sealed polyethylene vessels. Furthermore, following standardization was accomplished: samples of 200 g, geometry of the polyethylene vessels, count time of 43,200 seconds for soil and 3,600 seconds for the main radioactive rock (calc-silicate). The analysis technique was based on determination of ²³⁸U and ²²⁶Ra radiological concentrations in Bq·kg⁻¹.

Before beginning the gamma-analysis, the samples remained in the hermetically sealed vessels over thirty days to attain the radioactive equilibrium between ²²⁶Ra and the decay products with short half-lives.²

To determine uranium radiological concentrations, the gamma-photopeak of ²³⁴Th at 63 keV was used, and by means of the photopeaks of ²¹⁴Pb and ²¹⁴Bi at 352 and 609 keV, respectively, it was possible to determine ²²⁶Ra radiological concentrations.² As is well known, this technique is not destructive, it is cheap, and proven to be efficient because of the amount of information obtained.

For background counting, an empty polyethylene vessel with the same geometry as for the samples was used. The counting time was the same,⁸ being, at the end, subtracted from those of the samples.

For calculations of specific activities (Bq·kg⁻¹), the method of absolute analysis was used,⁹ which needs the determination of the counting efficiency for specific energies:

$$A = \frac{C}{\varepsilon \cdot t \cdot \gamma \cdot m} \quad (1)$$

where C is the net area of the considered peak, ε is the detector efficiency for the specific peak energy, t is the counting time (s), γ is the percentage gamma-emission probability of the radionuclide under consideration, and m is the mass of the sample in kg.

The efficiency was established using a gamma-source of ¹⁵²Eu, with an energy range of 39 keV to

2 MeV, certified by the Institute for Radioprotection and Dosimetry, (IDR) Rio de Janeiro, Brazil.

To minimize self-absorption effect, the standard source was added to the soil and rock matrix. To improve the determination of efficiencies, a statistical software was used for curve adjustment.

Results and discussion

Using the ²³⁴Th photopeak at 63 keV for ²³⁸U, it was possible to determine activities which change from 22 to 268 Bq·kg⁻¹ (mean of 92 Bq·kg⁻¹) in soil samples, and 22 kBq·kg⁻¹ in the calc-silicate rock (main anomaly).

If the count mean of the ²¹⁴Pb (at 352 keV) and ²¹⁴Bi (at 609 keV) photopeaks for ²²⁶Ra is used, the activities change from 14 to 367 Bq·kg⁻¹ for soil (mean of 58 Bq·kg⁻¹), and reach a value of 17 kBq·kg⁻¹ in the calc-silicate rock.

Compared with the average activities found in literature (25 Bq·kg⁻¹ for ²³⁸U¹⁰ and 30 Bq·kg⁻¹ for ²²⁶Ra in soils)⁸, we observe that the activities in the studied area are expressively higher.

Isoactivity lines in Figs 2 and 3 show the distribution of ²³⁸U and ²²⁶Ra activities, respectively.

The lines also allow an evaluation of the mobility of uranium and radium, and show that near the outcrops of the radioactive mother rock (parent rock) the migration of uranium and radium is very similar. However, far from the main outcrops (higher concentration of isoactivity lines), the uranium radiological concentrations are higher than those of radium.

Figure 4 shows the specific activities of ²³⁸U and ²²⁶Ra in the soil around the calc-silicate rock. Only 6.4% of the soil samples have specific activities of ²²⁶Ra over those of ²³⁸U. This is due to the lower radium mobility, and means, therefore, that uranium migrates sequentially in the soil.

Table 1 shows statistic data for the 78 soil samples. The rock sample with the highest radiation has a U/Ra ratio of 1.2. For ²³⁸U and ²²⁶Ra, the modes of the soil samples are respectively 79 and 40 Bq·kg⁻¹ and the arithmetic means 92 and 58 Bq·kg⁻¹. If compared with data of worldwide references, as shown above, the latter are significantly high.

The ratios between the means of radiological concentrations of uranium and radium in our area and worldwide means, considered here (concentrations factors) are about 4 (92:25) for uranium and 2 (58:30) for radium.

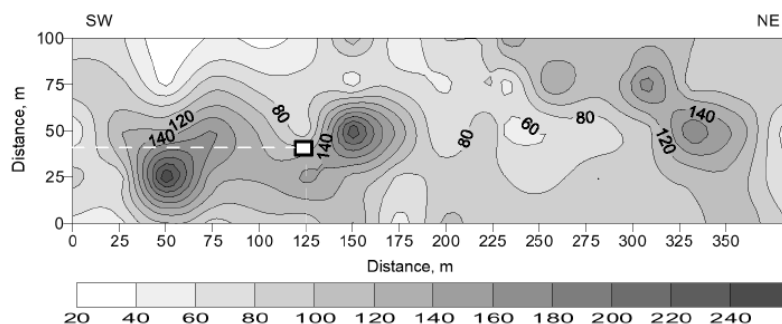


Fig. 2. Isoactivity lines for ^{238}U ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) in soil; $\square$ shows the highest anomaly of the calc-silicate rock ($22 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ of ^{238}U) (position: in the small square (A) of Fig. 1)

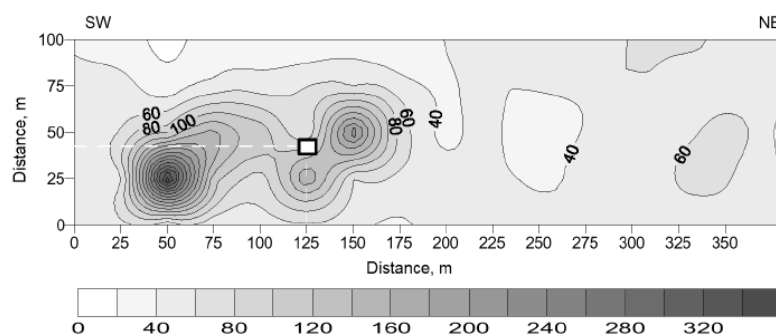


Fig. 3. Isoactivity lines for ^{226}Ra ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) in soil; $\square$ shows the highest anomaly of the calc-silicate rock ($17 \text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ of ^{226}Ra) (position: in the small square (A) of Fig. 1)

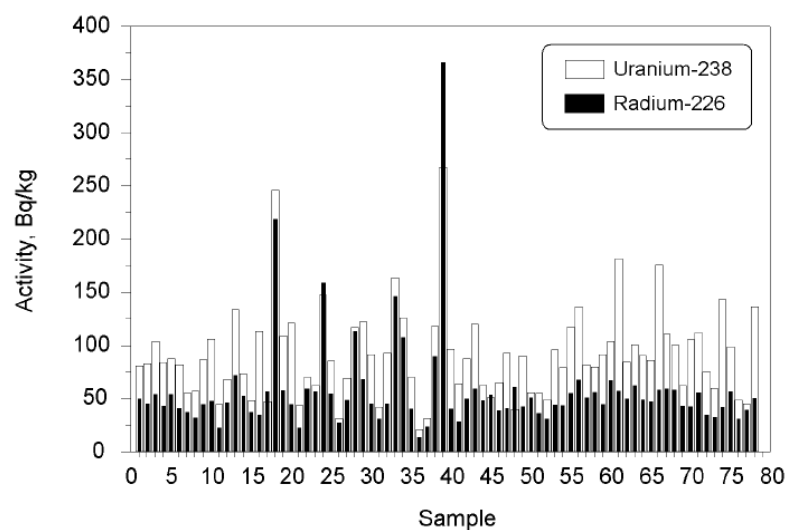


Fig. 4. Activities of ^{238}U and ^{226}Ra in soil

Table 1. Statistical data for radioactivity concentrations of ^{238}U and ^{226}Ra in soil samples

Statistical parameter	Activity, $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	
	^{238}U	^{226}Ra
Determination range	22–268	14–367
Arithmetic mean	92	58
Geometric mean	84	50
Median	87	49
Mode	79	40
Frequency distribution	Normal	Log-normal

Conclusions

Gamma-spectrometry with high purity germanium detectors is a very efficient analysis method for radionuclides in environmental samples. Analysis results, using the energy level at 63 keV for ^{238}U and the mean activity of the levels at 352 and 609 keV for ^{226}Ra , provide radiometric representative values in the anomalous area. The main observation to be drawn here is that the high uranium and radium activities of the soil samples are due to the high uranium content of calc-silicate rock outcrops in the area in question. Uranium activities are higher than those of radium (1.7 on $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ratio average), which is explained by the larger uranium migration and distribution.

As is known, the migration of these radionuclides in soils depends on their chemical properties, available organic matter, geographical conditions (climate, topography, etc.), among other factors. Activities of $22\text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^{238}U and $17\text{ kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ^{226}Ra on the mother rock and averages of $92\text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ U and $58\text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ Ra in soil samples were measured.

If compared with data of worldwide bibliography we conclude that they are nearly 3.7 fold higher for uranium and 2.0 fold for radium on average in soil. These results allow an estimate of the radiological risk to the

environment and is useful as a support to subsistence farming, livestock, milk production and its derived products, which are delivered in some towns such as Pedra, Venturosa, Arcoverde, Garanhuns, Caruaru, and more distant ones.

Thus, the control of environmental radioactivity is of great importance for the health of the population.

*

The authors thank the Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) and Professor Suelo VITA DA SILVEIRA (through FADE – Fundação de Apoio ao Desenvolvimento da Universidade Federal de Pernambuco) for the financial support, and Professor Carlos ADOLFO M. BALTAR for making the laboratory under his management available to us (Laboratório de Tecnologia Mineral da Universidade Federal de Pernambuco).

References

1. A. J. R. LINS, Projeto Venturosa: Geologia e Radiometria da Quadrícula Sudoeste da Folha Venturosa PE, Sub-Área SE, Recife, 1976, p. 74.
2. V. KANNAN, M. P. RAJAN, M. A. R. IYENGAR, R. RAMESH, Appl. Radiation Isotopes, 57 (2002) 109.
3. R. K. SCHULZ, Health Phys., 11 (1965) 1317.
4. A. W. ROSE, H. E. HAWKES, J. S. WEBB, Geochemistry in Mineral Exploration, Vol. 2, New York, 1979, p. 657.
5. U. SANSONE, L. STELLATO, G. JIA, S. ROSAMÉLIA, S. GALDINO, S. BARBIZZI, M. BELLI, Radiat. Prot. Dosim., 97 (2001) 317.
6. W. ARAFA, J. Environ. Radioact., 75 (2004) 315.
7. S. AKYL, M. A. A. ASLANI, G. GURBOGA, S. AYTAS, M. ERAL, J. Radioanal. Nucl. Chem., 254 (2002) 9.
8. A. MALANCA, V. PESSINA, G. DALLARA, Health Phys., 65 (1993) 298.
9. M. TZORTZIS, H. TSERTOS, S. CHRISTOFIDES, G. CHRISTODOULIDES, Radiat. Meas., 37 (2003) 221.
10. N. DIMOVA, L. KINOVA, B. VELEVA, B. SLAVCHEV, Geol. Geophys., 46 (2003) 241.

Radium-228 as an Indicator of Thorium-232 Presence in a Soil in Pernambuco, Brazil

J. A. Santos Júnior · R. S. Amaral ·
C. M. Silva · R. S. C. Menezes · J. D. Bezerra

Received: 17 June 2008 / Accepted: 2 January 2009 / Published online: 16 January 2009
© Springer Science+Business Media, LLC 2009

Abstract Radiometric measurements were taken in a small area of Pernambuco, Brazil, with the objective of monitoring the radium of the soil. For this, 78 soil samples were collected. The gamma analyses of the samples were carried out using HPGe. The values obtained for the ^{226}Ra varied from 14 to 367 Bq kg^{-1} and for the ^{228}Ra from 73 to 429 Bq kg^{-1} . The ratio $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ varied from 1.0 to 7.0. Therefore, it is an indicator of an additional radioactivity source in this soil, maybe ^{232}Th , which will be further investigated in future studies.

Keywords Radium · Environment radionuclides · Gamma-spectrometry

Natural radioactivity may represent a great source of exposure to living beings. In soils, these levels are associated with the mineral composition of the rocks in each area and the concentrations of radionuclides present in the rocks that originated the soil. In general, more elevated levels of radiation are associated with igneous rocks and lower levels with sedimentary rocks (Tzortzis and Tsertos 2004).

Radium is present in all of the natural series of radioactive decay and is usually found in nature in low concentrations (in soil, a mean of 0.8 ppt) (Arafa 2004). However, greater concentrations of radium are found in minerals that contain uranium and thorium. The mean

activity of radium estimated on the soil surface of normal areas is nearly 26 Bq kg^{-1} (Malanca et al. 1993). From a biological and radiological point of view, the $^{226,228}\text{Ra}$ isotopes, are considered the most important radionuclides of the ^{238}U and ^{232}Th series, respectively. When in the human body, the radioisotopes behave chemically and physiologically like calcium and tend to concentrate basically in the bones and teeth. In the environment they form soluble compounds and can contaminate underground reservoirs, soils, plantations, food sources and consequently the human food chain.

In the northeastern region of Brazil, uranium anomalies were identified during radiometric monitoring studies carried out in the period of 1974–1975 in the municipality of Pedra, in the state of Pernambuco. In this area, measurements above 15,000 cps, carried with a scintillation counter, were found in bodies of a rock (Santos Júnior et al. 2006). However, despite the knowledge about these uranium anomalies, no monitoring studies have been conducted so far with respect to the presence of $^{226,228}\text{Ra}$ isotopes in the soil. This is a relevant question, since these isotopes may enter the human food chain in the milk produced by cattle raised in this area, which is sold in many cities in the state, including Recife, which is the capital of Pernambuco. Therefore, this work was conducted with the purpose of determining ^{226}Ra and ^{228}Ra activity in the soil, as well as their spatial distribution, around the main uranium anomaly in the municipality of Pedra, in Pernambuco.

Materials and Methods

About 78 soil samples were collected in the study area, above and around one of the main anomalies of uranium in an amphibolitic calcium-silicatic rock. The sampling was

J. A. Santos Júnior (✉) · R. S. Amaral ·
C. M. Silva · R. S. C. Menezes · J. D. Bezerra
Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de
Pernambuco (UFPE), Avenida Professor Luiz Freire, 1000,
Cidade Universitária, CEP 50740-540 Recife, Brazil
e-mail: jaraújo@ufpe.br

carried out at intervals of 25 m at a mean depth of 35 cm, on the C horizon. In the laboratory, the samples were dried at 100°C, then homogenized and sieved at a granulometry lower than 63 μm , and 200 g of each sample were packed in polyethylene containers of 210 cm^3 volumetric capacity. After this, the samples were hermetically sealed for a minimum period of 30 days, to establish the radioactive equilibrium between the short half-life radionuclides before measurements with the HPGe. In order to avoid any Rn loss, the internal part of the polyethylene receptacle was covered with aluminum foil, so as to cover the entire soil sample.

The measurements were carried out with a gamma spectrometry system, which allows to obtain the activities of these isotopes, to verify the environmental contamination levels. The measuring system is composed of a CanberraTM GX2518 (HPGe) hyper pure germanium detector, type BeGe, with an active volume of 41.1 cm^3 . The detector presents a resolution of 1.77 keV for the 1,332 keV energy of the ^{60}Co , intrinsic efficiency of 27.7%, and is coupled to a multichannel analyzer (MCA) with 8,192 channels and CanberraTM Genie-2000 software. The detector is wrapped in a lead cover of ~ 6.5 cm thickness to reduce the background (BG) interface effects. For analyzing the ^{226}Ra , the gamma photopeaks of ^{214}Pb ($E_\gamma = 352$ keV; $\gamma_\% = 37.10\%$) and ^{214}Bi ($E_\gamma = 609$ keV; $\gamma_\% = 46.09\%$) were used, as well as the gamma photopeaks of ^{228}Ac ($E_\gamma = 911$ keV; $\gamma_\% = 29.00\%$) and $E_\gamma = 969$ keV; $\gamma_\% = 17.46\%$) for ^{228}Ra .

In gamma spectrometry, the counting efficiency is considered the most difficult problem to be solved, because the final result depends directly on a good efficiency curve. To obtain this, a liquid standard of ^{152}Eu certified by the IRD (Institute of Radioprotection and Dosimetry—Rio de Janeiro) was used. To reduce the effects of gamma auto-absorption, an aliquot of 50 mL of standard was added to 200 g of a previously analyzed soil matrix with a density similar to the samples with unknown activities. To prepare this standard sample, the same conditions as in the analysis of soil samples were used, such as: density, granulometry, mass, geometry of the container, geometry of counting (detector positioning) and counting time.

By using an statistical software, it was possible to obtain a better adjustment for the efficiency curve and consequently Eq. 1.

$$s = \frac{a}{a-b} (e^{-bE_\gamma} - e^{-aE_\gamma}). \quad (1)$$

where s is the counting efficiency of the considered gamma photopeak, a and b are statistical parameters for curve correction (0.0016 and 0.04757, respectively), and E_γ the gamma energy for which the counting efficiency is to be obtained.

For calculation of the radionuclide activities, Eq. 2 (Tzortzis et al. 2003), based on the established efficiency curve for ^{152}Eu , was employed:

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

where A is the activity (Bqkg^{-1}); C is the total net area of the radionuclide photopeak at the considered energy (counts); ε is the counting efficiency for the considered specific energy; t is the counting time (s); γ the gamma abundance of the considered radionuclide; and m the sample mass (kg).

To determine the ^{226}Ra activities, the mean of the activities obtained for ^{214}Pb ($E_\gamma = 352$ keV; 37.10%) and for ^{214}Bi ($E_\gamma = 609$ keV; 46.09%), was used; for ^{228}Ra it was used the mean of the ^{228}Ac activities ($E_\gamma = 911$ keV; 29.00% and $E_\gamma = 969$ keV; 17.46%). The sample masses were standardized in 200 g and the gamma counting time in 43,200 s (12 h).

For the detection limit (LD) calculations, a soil sample from an area of low radioactivity and Eq. 3 were used:

$$LD = \frac{4.66\sqrt{C}}{\varepsilon \times \gamma \times m \times t} \quad (3)$$

where C is the net counting; ε the counting efficiency; γ the gamma abundance or gamma emission probability of the considered radionuclide; m the mass (kg); t the counting time (s), and the value 4.66 is the factor that corresponds to 95% confidence.

Results and Discussion

The values obtained for the radionuclides activities of the anomalous rock (amphibolitic calcium-silicate) varied from 14,018 to 83,567 Bqkg^{-1} for the ^{226}Ra (Santos Júnior et al. 2006). On the other hand, the values for ^{228}Ra stayed below the detection limit (<10 Bqkg^{-1}).

Table 1 shows statistical parameters for ^{226}Ra and for the $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio, based on the same mean activity calculations. It is observed in this table that the ^{226}Ra activities vary from 14 to 367 Bqkg^{-1} (mean of 58 Bqkg^{-1}), while for

Table 1 Statistical parameters for ^{226}Ra – ^{228}Ra

Parameter	Activity (Bqkg^{-1})		
	^{226}Ra	^{228}Ra	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$
Measure of interval	73–429	14–367	0.3–6.9
Arithmetic mean	223	58	4.6
Median	211	49	5.3
Mode	160	41	5.7
Frequency	Tendency to log-normal		

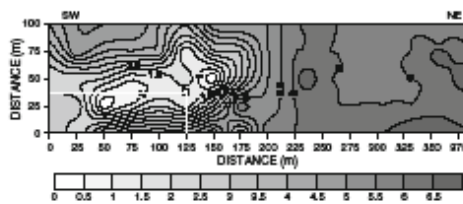


Fig. 1 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ isolines. Uranium anomaly in rock

^{228}Ra the values vary from 73 to 429 Bq kg^{-1} (mean of 223 Bq kg^{-1}). Based on these data, it was possible to observe that in 96% of the samples the ^{228}Ra activities are higher than those of ^{226}Ra . For the $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio, it was possible to see that the radiological concentrations of ^{228}Ra are on average five times greater than those of ^{226}Ra , with values varying from 0.3 to 7 (mean of 5).

The limits of detection (LD) for the ^{226}Ra were $\sim 2 \text{ Bq kg}^{-1}$ for 352 keV photopeak of the ^{214}Pb and 3 Bq kg^{-1} for the 609 keV photopeak of the ^{214}Bi . For ^{228}Ra the LD values were 8 and 12 Bq kg^{-1} for the 911 and 969 keV photopeaks of the ^{228}Ac , respectively.

Figure 1 shows the isolines for the $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio. The values obtained show what was observed previously, i.e., near the anomaly the $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio is < 1 , while the values increase in the NE direction of the area.

These evidences show that ^{228}Ra concentrations are not directly correlated with the ^{226}Ra concentrations, it being obvious that ^{228}Ra found in the soil is not migrating from the uraniferous anomalous rock, but from another radioactive source that still has not been analyzed. The isorads show that the uranium anomalous rock does not present associated ^{232}Th , since the ^{228}Ra concentrations are greater

in the northeastern portion of this area (contrary to the uranium anomaly). Therefore, as said above, we conclude that there is another natural radioactive source to be analyzed, very likely the granite that occurs in this area. From these results, new studies will be developed to identify the source of ^{232}Th supply, and so to warrant a better radiological control of the area, thus minimizing the risks associated with this radionuclide.

Acknowledgments This research work was funded partially by the national council for scientific and technological development (CNPq), Brazil, which provided a graduate scholarship to the first author of this article. The authors thank Professor Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso (in memoriam) for the scientific contribution to the research.

References

- Arafa W (2004) Specific activity and hazards of granite samples collected from the eastern desert of Egypt. *J Environ Radioact* 75:315–327. doi:10.1016/j.jenvrad.2004.01.004
- Malanca A, Pessina V, Dallara G (1993) Assessment of the natural radioactivity in the Brazilian state of Rio Grande do Norte. *Health Phys* 65:298–302. doi:10.1097/00004032-199309000-00008
- Santos Júnior JA, Cardoso JBRF, Silva CM, Silveira SV, Amaral RS (2006) Determination of radionuclides in environment using gamma spectrometry. *J Radioanal Nucl Chem* 269:451–455. doi:10.1007/s10967-006-0417-x
- Tzortzis M, Tzortzis H (2004) Determination of thorium, uranium and potassium elemental concentrations in surface soils in Cyprus. *J Environ Radioact* 77:325–338. doi:10.1016/j.jenvrad.2004.03.014
- Tzortzis M, Tzortzis H, Christofides S, Christodoulides G (2003) Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks. *Radiat Meas* 37:221–229. doi:10.1016/S1350-4487(03)00028-3

Estudo comparativo entre os detectores HPGe e NaI(Tl) na determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo

J. A. S. Júnior; R. S. Amaral; C. M. Silva; R. S. C. Menezes; J. D. Bezerra

Grupo de Estudos em Radioecologia (RAE), Departamento de Energia Nuclear (DEN), Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), 50740-540, Recife-PE, Brasil

jaraújo@ufpe.br

(Recebido em 31 de janeiro de 2009; aceito em 25 de abril de 2009)

Atualmente é de fundamental interesse a certificação de métodos analíticos em busca de maior grau de precisão e exatidão nas análises dos dados. O desenvolvimento da tecnologia de novos detectores tem proporcionado a otimização no processo analítico, fornecendo parâmetros cada vez mais confiáveis para a prática da instrumentação nuclear. A disponibilidade e utilização de técnicas de análises não destrutivas têm sido difundidas mundialmente, como é o caso da espectrometria gama, por ser um método bastante eficiente na determinação de radionuclídeos naturais. Neste contexto, a instrumentação mais utilizada tem sido os detectores NaI(Tl) e principalmente os HPGe, este último, devido à sua alta resolução. A análise de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras ambientais proporcionaram obter parâmetros necessários para qualificação e quantificação de radionuclídeos naturais. A alta resolução do HPGe associada à alta eficiência do NaI(Tl) e o uso de parâmetros estatísticos, permitiram estabelecer critérios de maior confiabilidade nos procedimentos analíticos.

Palavras-chave: Radioquímica, técnicas analíticas, radioecologia.

Nowadays, it is of fundamental interest that analytical methods are certified in search of greater precision and accuracy in data analyses. Statistics have produced models for optimization and for supplying more reliable parameters for the field of nuclear instrumentation. The availability and utilization of non destructive methods of analysis have spread throughout the world. One example of these methods is gamma spectrometry, which is very efficient for determination of radionuclides. In this context, NaI(Tl) and HPGe detectors have been the most utilized for gamma spectrometry, especially HPGe due to its high resolution. This work has the objective of carrying out a comparative study between HPGe and NaI(Tl) detectors for analyses of ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K in environmental samples.

Keywords: Radiochemistry, analytical techniques, radioecology.

1. INTRODUÇÃO

O conhecimento dos níveis de radioatividade do meio-ambiente é de grande importância na avaliação da contribuição da dose de radiação gama no ser humano. Em relação aos radionuclídeos naturais, a fonte de exposição externa mais importante, provém dos descendentes das séries do ^{238}U e ^{232}Th como também do ^{40}K [1].

Na quantificação de radionuclídeos naturais, é de fundamental importância a escolha do detector para cada tipo de análise. Sendo assim, é possível obter maior precisão e exatidão nos resultados. Atualmente existem diversas técnicas utilizadas para avaliar as concentrações de radionuclídeos em amostras oriundas dos sistemas bióticos e abióticos. Para tais finalidades, as técnicas mais utilizadas são: espectrometria alfa, cintilação líquida, espectrometria de massa e análise por ativação neutrônica. Por outro lado, todas essas técnicas utilizam métodos radioquímicos convencionais, que geralmente, são trabalhosos, de custos elevados e normalmente destroem as amostras. A técnica de espectrometria gama tornou-se uma excelente alternativa na análise de radionuclídeos em amostras ambientais. Essa técnica radioanalítica encontra-se bastante difundida e utilizada pela maioria dos laboratórios que trabalham com certificação de concentração de radionuclídeos em diversos tipos de amostras [2,3,4,5]. Uma das principais vantagens desta técnica é a quantidade de informações obtidas em uma única análise. Além disso, é uma técnica de análise rápida, multielementar e não destrutiva.

Para o uso da técnica de espectrometria gama, os detectores mais utilizados são do tipo inorgânicos sólidos e os semicondutores. Esses detectores permitem obter informações e tirar conclusões sobre os níveis de radiação presentes na matéria. Com as medidas realizadas por

esses detectores, é possível calcular as concentrações dos radionuclídeos presentes em uma amostra, estimando os parâmetros de radioproteção responsáveis pela garantia do princípio ALARA que estabelece as condições necessárias para proteger o homem dos efeitos causados pelas radiações ionizantes [6].

A maior preocupação dos órgãos de controle de radiação ionizante, entre eles, a Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA - International Atomic Energy Agency) e a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), tem sido com a exposição externa devido à radiação gama. Neste contexto, os detectores utilizados nos estudos de qualificação e quantificação dos níveis de radiação gama, tem sido o iodeto de sódio ativado com tálio - NaI(Tl) e principalmente, o germânio hiperpuro - HPGe.

A principal característica do HPGe é baseada na sua alta resolução em determinar a energia da radiação gama, proporcionando assim, uma menor incerteza na medida. Em relação aos detectores cintiladores, estes apresentam a característica de emitirem luz quando expostos à radiação ionizante. Este é o caso do NaI(Tl) que é considerado mais eficiente na medida da radiação gama, pois, apresenta alta capacidade de registrar os fótons incidentes, o que o torna muito sensível à variação da tensão da fotomultiplicadora e dos ruídos eletrônicos.

Cada tipo de detector apresenta alguma vantagem operacional. Entretanto, para métodos absolutos é preferível utilizar os detectores que apresentem maior definição em termos de resolução. Apesar da limitação do HPGe em relação ao resfriamento, sua maior resolução os tomam os detectores mais utilizados na análise por espectrometria gama.

Os principais parâmetros a serem considerados numa análise por espectrometria gama para garantir um bom desempenho dos detectores e um aumento na confiabilidade dos resultados são: a eficiência de contagem por energia do fóton, pois, a determinação exata da eficiência de contagem é o problema chave para medidas de radiação gama [7]; boa calibração do sistema de medidas; alta resolução do sistema por fotopico; baixo limite de detecção; um sistema que forneça o cálculo da área líquida do fotopico; um arranjo experimental que permita validar os resultados experimentais com a utilização de padrões certificados; minimização da auto-absorção pelo uso de padrões com densidades semelhantes às amostras analisadas e padronização das massas das amostras analisadas, dos padrões e do tempo de aquisição.

Diante da necessidade da escolha de um detector que forneça uma boa resposta na detecção da radiação gama emitida por radionuclídeos naturais, o presente trabalho teve como objetivo realizar uma comparação dos parâmetros espectrométricos dos detectores NaI(Tl) e HPGe na medida das concentrações de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras ambientais.

2. MATERIAIS E MÉTODOS

Nos procedimentos analíticos foram utilizados dois sistemas de medidas de espectrometria gama, o HPGe de alta resolução e o NaI(Tl), ambos da marca Canberra®. As condições laboratoriais, tais como, temperatura e umidade, foram padronizadas. Ambos os detectores foram envolvidos por uma blindagem de Pb de aproximadamente 6,5 cm de espessura e uma superfície interna delgada constituída de cobre e zinco, proporcionando assim, uma baixa radiação de fundo. O programa utilizado na análise dos espectros foi o Genie®-2000 fornecido pela empresa Canberra®.

Para calibração dos sistemas de medidas foram utilizadas fontes radioativas padrões de ^{60}Co , ^{137}Cs e ^{133}Ba . Os padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu foram utilizados para determinação das curvas de eficiências e certificação do método analítico utilizado. Também foram realizados ensaios analíticos com quinze amostras de solo com a finalidade de verificar o comportamento intrínseco de cada detector na determinação das concentrações de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras ambientais, e intercomparar os resultados obtidos.

2.1. Características do sistema de medidas HPGe

Este sistema de medidas é composto por um detector HPGe, cilíndrico e coaxial com janela de Be, 4,54 cm de diâmetro externo e volume ativo de 41,1 cm³. O detector apresenta uma resolução de 1,77 keV para a energia de 1.332 keV do ⁶⁰Co e eficiência relativa intrínseca de 27,7%. O detector foi montado em um criostato com capacidade máxima para 30 L de nitrogênio líquido e apresenta um consumo de 1,8 L de nitrogênio por dia. O arranjo experimental para coleta dos espectros inclui o detector com ponto de operação da fotomultiplicadora ajustado para 3.000 V e um sistema de amplificação modelo 2002 CSL com 8.192 canais.

2.2. Características do sistema de medidas NaI(Tl)

Esse sistema apresenta um detector NaI(Tl), com um cristal 2"x2". Sua resolução é de 8,5% para a energia de 662 keV do ¹³⁷Cs e está interligado a um MCA EAGLE Plus Canberra® com 4.096 canais. O ponto de operação da fotomultiplicadora foi ajustado para trabalhar a 1.000V e o MCA com 2.096 canais.

3. PADRONIZAÇÃO DA METODOLOGIA

3.1. Curvas de eficiência

Para a utilização das metodologias propostas, foram construídas curvas de eficiência utilizando-se fontes radioativas padrões de ²⁴¹Am e ¹⁵²Eu certificadas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), com atividades de 78,13 kBq.kg⁻¹ e 3,78 kBq.kg⁻¹ em 17.10.2007, respectivamente. Estes radionuclídeos apresentam amplos espectros de energias bem definidas, permitindo a obtenção de uma boa estatística de contagem, e conseqüentemente, uma boa curva-padrão. Para o ²⁴¹Am foi utilizada a energia de 59,54 keV com 36,00% de probabilidade de emissão ($\gamma_{\%}$). Na análise dos fotopicos do ¹⁵²Eu foram utilizadas as energias de 121,78 keV ($\gamma_{\%}$ = 28,37%); 244,70 keV ($\gamma_{\%}$ = 7,53%); 344,28 keV ($\gamma_{\%}$ = 26,57%); 411,13 keV ($\gamma_{\%}$ = 2,4%); 443,96 keV ($\gamma_{\%}$ = 3,12%); 778,90 keV ($\gamma_{\%}$ = 12,97%); 867,39 keV ($\gamma_{\%}$ = 4,21%); 964,06 keV ($\gamma_{\%}$ = 9,64%); 1.085,84 keV ($\gamma_{\%}$ = 10,13%); 1.112,09 keV ($\gamma_{\%}$ = 13,54%); 1.212,97 keV ($\gamma_{\%}$ = 1,41%); 1.299,15 keV ($\gamma_{\%}$ = 1,63%) e 1.408,02 keV ($\gamma_{\%}$ = 20,85%). Tais energias encontram-se sugeridas no documento técnico n°. 619 da Agência Internacional de Energia Atômica [8].

A correção das atividades das fontes padrões foram calculadas pela seguinte equação:

$$A_{Eip} = A_{Eip0} \times e^{-\lambda \times t} \quad (1)$$

onde A_{Eip} é a atividade a ser corrigida, com base na atividade inicial A_{Eip0} e na constante de decaimento radioativo, λ .

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

3.2. Eficiência de contagem dos padrões

Para os cálculos das eficiências de contagens foram estabelecidos alguns critérios que permitiram obter maior confiabilidade dos resultados, são eles: quantidade de amostra utilizada na análise, utilização de padrões certificados (devidamente adequados para as faixas de energias em estudo), diluição dos padrões diretamente em matrizes com densidades aproximadamente

iguais às densidades das amostras analisadas, padronização dos recipientes, padronização da geometria de contagem (posicionamento no detector) e o tempo de contagem.

Com a utilização desses parâmetros, da curva de eficiência que foi determinada experimentalmente e o uso da Equação 2 [6], foram calculadas as eficiências de contagens das energias específicas para cada radionuclídeo estudado.

$$\epsilon_E = \frac{N_{Ei}}{A_{Eip} \times t \times \gamma_d \times V_p} \quad (2)$$

ϵ_E é a eficiência de contagem, determinada pela curva de eficiência; N_{Ei} é a área líquida de cada fotopico, determinada experimentalmente em contagens; A_{Eip} a atividade específica gama atual do padrão; t o tempo de contagem (s); γ_d a abundância gama do padrão para a energia em consideração e V_p o volume do padrão (mL).

3.3. Determinação da área líquida

A medida da radiação de fundo (background, BG) é muito importante em instrumentação nuclear, pois mede o nível de radioatividade do ambiente no qual estão sendo realizadas as medidas radiométricas.

Para a contagem do BG, foi usado um recipiente vazio com a mesma geometria dos recipientes utilizados nas contagens das amostras [3]. Essas contagens obedeceram também, o mesmo tempo de contagem das amostras. No final, cada contagem de BG foi subtraída da contagem de cada amostra analisada [10, 11], calculando-se assim, a contagem líquida da área do fotopico pela Equação 3 [12].

$$N_{Ei} = \int_{u=u}^v X_u - BG \quad (3)$$

N_{Ei} é a área total líquida do fotopico de interesse (número total de impulsos por segundo); u é a região de interesse (ROI) do canal inicial da área do fotopico; v é a (ROI) do canal final da área do fotopico; X_u é a contagem em cada canal e BG é a contagem da radiação de fundo (background).

3.4. Cálculo das atividades

Para os cálculos das atividades específicas, foi utilizada a Equação 4 sugerida pela IAEA, 1989 [9]:

$$A_{Ei} = \frac{N_{Ei}}{\epsilon_E \times t \times \gamma_d \times M_s} \quad (4)$$

onde A_{Ei} é a atividade específica ($Bq \cdot kg^{-1}$) calculada para um determinado fotopico; N_{Ei} é a área líquida do fotopico na energia E, calculada pela equação 3; ϵ_E é a eficiência detectada para a energia E ($\epsilon_E \leq 1$); t é o tempo de contagem (s); γ_d é o número de gamas por desintegração para o radionuclídeo na transição de energia E ($\gamma_d \leq 1$); e M_s é a massa em kg da amostra analisada.

3.5. Limite de detecção

O limite mínimo de detecção para um espectrômetro gama representa a sua capacidade de detectar um fóton gama na presença de interferentes, tais como: radiação de fundo, espalhamento Compton, ruídos do sistema de medidas, entre outros. O LD dependerá do tipo de amostra a ser analisada, da energia da radiação, da geometria de contagem, do tipo de detector,

do fundo do sistema e do tempo de contagem [13]. Para calcular o limite de detecção (LD), utilizou-se uma amostra de solo de uma área sem alterações radioecológicas. Neste caso, a massa e o tempo de contagem também foram padronizados. O valor do LD foi calculado usando a Equação 5 [13, 14]:

$$LD = \frac{4,66\sqrt{N_{\text{Ei}}}}{\epsilon_R \times \gamma_d \times Ms \times t} \quad (5)$$

N_{Ei} é a contagem líquida; ϵ_R é a eficiência de contagem; γ_d é abundância gama percentual do radionuclídeo em consideração; Ms a massa (kg); t o tempo de contagem (s) e 4,66 é o fator constante correspondente a um nível de confiança de 95%.

Para obtenção da área líquida, N_{Ei} , foi realizada a subtração do espectro bruto (representado pela contagem da amostra, do recipiente e da radiação de fundo) com o espectro de fundo (representado pela contagem da radiação de fundo e do recipiente vazio), realizada com auxílio do software Genie-2000[®].

3.6. Resolução

A resolução em energia é considerada o parâmetro mais importante para definir a função resposta do detector, sendo por definição, calculada em relação à medida da largura do fotopico à metade da altura máxima (FWHM: Full Width at Half Maximum). Neste caso, considera-se que a altura dos pulsos tendem a uma distribuição normal em torno de um valor médio. O valor da resolução em energia é calculada pela Equação 6 [14, 15].

$$R = \frac{FWHM}{E} \times 100 \quad (6)$$

R é a resolução em energia; FWHM a medida da largura do fotopico a metade da altura máxima e E a energia média do fotopico. Quanto menor o valor de R , melhor a resolução do sistema em energia, de forma que energias mais próximas possam ser separadas. As interferências do sistema, tais como, ruídos, fótons de baixa energia, e outros, influenciam no alargamento do fotopico, diminuindo a resolução.

A medida da largura total do fotopico a metade da altura máxima, $FWHM_T$, pode ser calculada pela Equação 7 [14].

$$(FWHM)_T^2 = (FWHM)_D^2 + (FWHM)_X^2 + (FWHM)_E^2 \quad (7)$$

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

4. RESULTADOS

4.1. Retas de calibração

As Figuras 1 e 2 apresentam as retas de calibração (canal x energia) construídas para os detectores HPGe e NaI(Tl), respectivamente, com base nos padrões de ^{133}Ba ($E_\gamma = 81,0$ e $356,0$ keV), ^{137}Cs ($E_\gamma = 661,7$ keV) e ^{60}Co ($E_\gamma = 1.173,2$ e $1.332,5$ keV).

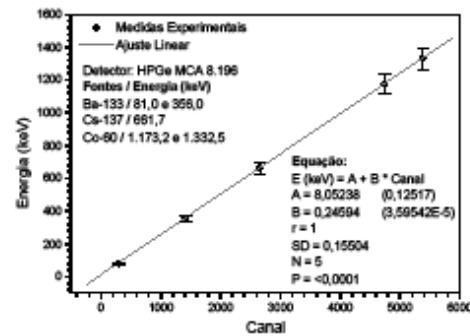


Figura 1: Curva de calibração para HPGe com MCA 8.196 canais.

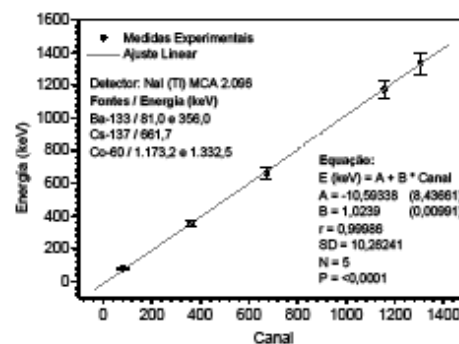


Figura 2: Curva de calibração para NaI (TI) MCA 2.096 canais.

A partir das medidas experimentais foi realizado o ajuste linear para cada reta. Para um número total de medidas, $N = 5$, utilizadas na calibração dos sistemas de medidas (Figuras 1 e 2), os ajustes lineares, observados com base nos coeficientes de correlação linear, r , foram excelentes ($r = 1,00000$ para o HPGe e $r = 0,99986$ para o NaI(Tl)). Nestas figuras, são apresentadas as equações de ajuste linear, para um intervalo de energia variando de valores próximos de 0,0 a aproximadamente 1.500 keV. Os parâmetros obtidos para a calibração do HPGe e do NaI(Tl) mostraram que os sistemas de medidas estão prontos para realização de medidas experimentais. As diferenças nas posições das energias com os canais se devem ao uso de multicanais com capacidades diferentes, ou seja, para o HPGe foi utilizado um MCA com 8.196 canais e para o NaI(Tl) um MCA com 4.096 canais com disponibilidade para 2.096 canais, uma diferença apenas nos posicionamentos dos fotopicos, uma vez que os padrões utilizados e as respectivas energias foram mantidas constantes.

4.2. Resolução em energia

A Tabela 1 apresenta a resolução média para cada fotopico utilizado na determinação do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K . Neste caso, foram utilizadas quinze amostras, cujos valores representativos foram às médias aritméticas obtidas das contagens de cada fotopico. Escolheu-se a média aritmética como medida de tendência central, porque não houve discrepância no conjunto de dados analisados. Foi adotado o valor médio como medida de tendência central, uma vez que não houve divergências significativas para os dados analisados.

Tabela 1: Resolução em energia para HPGe e NaI(Tl).

RADIONUCLIDEO	E_γ (keV)	R (%) HPGe	R (%) NaI(Tl)
^{238}U	63	1,28	5,83
^{232}Th	338	0,36	8,40
	911	0,16	3,34
	969	0,16	2,85
^{40}K	1.461	0,12	5,00

A Figura 3 apresenta o comportamento da resolução em energia (R%) para os detectores HPGe e NaI(Tl). Para o HPGe, o comportamento da resolução em função da energia é definido por uma função exponencial, onde a resolução aumenta com o aumento da energia, tendendo a zero porém não tocando a reta $x = E$ (keV), onde $E \rightarrow \infty$ e $R \rightarrow 0$. O comportamento para o NaI(Tl) é totalmente diferente, onde ocorre variação da resolução em função da energia, ou seja, algo muito impreciso, não tendo como prever a função resposta para o estudo desse comportamento nas medidas realizadas. No intervalo entre aproximadamente 63 keV e 340 keV ocorre uma diminuição da resolução. A partir dessa última energia até nas proximidades de 985 keV, a resolução melhora e volta a diminuir dessa energia até aproximadamente 1.470 keV. Isto mostra que o comportamento do detector NaI(Tl) é bastante diferente do detector HPGe. É importante destacar que essa grandeza é uma característica unicamente do detector e que esse comportamento está de acordo com o estabelecido pela literatura [14], ou seja, os detectores do tipo NaI(Tl) apresentam intrinsecamente menor resolução que os detectores HPGe.

Considerando que uma faixa maior de canais foi trabalhada para o detector HPGe, enquanto que para o NaI(Tl) foi utilizado uma faixa mais estreita, 2.096 canais disponíveis, e levando em consideração as diferenças entre as resoluções dos dois sistemas (Figura 3), observa-se que na prática o detector HPGe apresenta um melhor poder de discriminar intervalos de energia, o que proporciona e justifica sua melhor resolução. Observa-se que, para o detector NaI(Tl), os fotopicos são mais abertos, o que caracteriza uma baixa resolução. Neste caso, quando se trabalha com NaI(Tl), não é possível distinguir nitidamente os fotopicos, em decorrência das superposições de energias que estão muito próximas. Sendo assim, as análises tornam-se trabalhosas e às vezes impossíveis de serem realizadas. A Figura 4 mostra os espectros obtidos da análise de uma amostra de solo medida nos detectores HPGe e NaI(Tl).

De acordo com a Figura 4, observa-se que os fotopicos são melhores definidos no detector HPGe (praticamente linhas verticais). No caso do espectro do NaI(Tl), os fotopicos são abertos, mostrando uma clara diminuição da resolução em energia (maior FWHM).

4.3. Curvas de eficiência

As Figuras 5 e 6 apresentam respectivamente, as curvas de eficiência em energia, obtidas para os detectores HPGe e NaI(Tl).

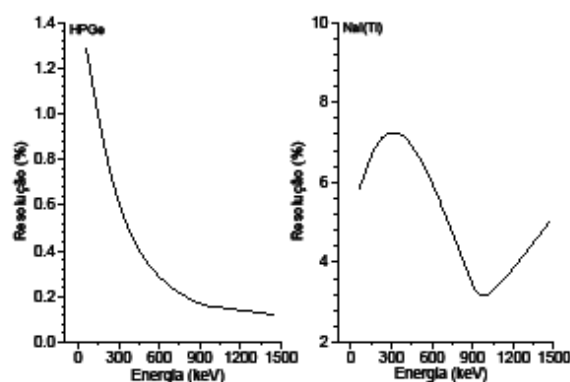


Figura 3. Comportamento da resolução em função da energia para os detectores HPGe e NaI(Tl).

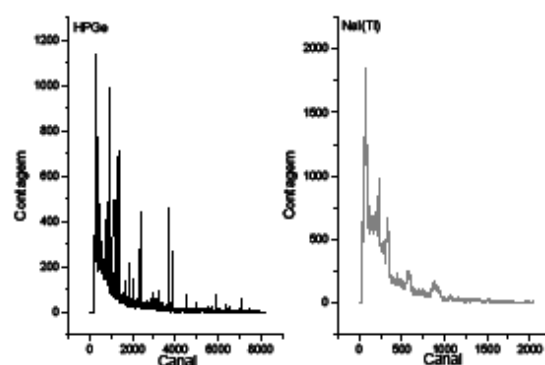


Figura 4. Espectros obtido para análises gama no HPGe e NaI(Tl) usando uma mesma amostra ambiental.

Para um nível de confiança de 95%, foi observado que os ajustes das curvas foram excelentes. Os coeficientes de ajuste linear (r) e quadrático (r^2) se ajustaram perfeitamente com valores de 0,99694 e 0,99389 para o HPGe e de 1,00000 para as duas situações no NaI(Tl). Pela curva estabelecida para detector HPGe (ver Figura 5), o ajuste abrange energias baixas e altas, com melhor concordância dos dados teóricos com os dados experimentais observados para energias mais altas. No caso mostrado na Figura 6, verifica-se grande discrepância entre os valores teóricos e os valores experimentais na região de baixa energia. Uma das razões para a explicação deste fenômeno é a baixa resolução em energia atribuída aos detectores cintiladores, o que proporciona sobreposição de alguns fotopicos. A alta eficiência dos detectores NaI(Tl) promove uma maior sensibilidade a interferentes na faixa de baixa energia, pois, para energias inferiores a 100 keV ocorrem efeitos devido aos raios X característicos, Compton contínuo e ruídos eletrônicos. Alteração na temperatura ambiental pode causar interferências nos detectores sólidos inorgânicos.

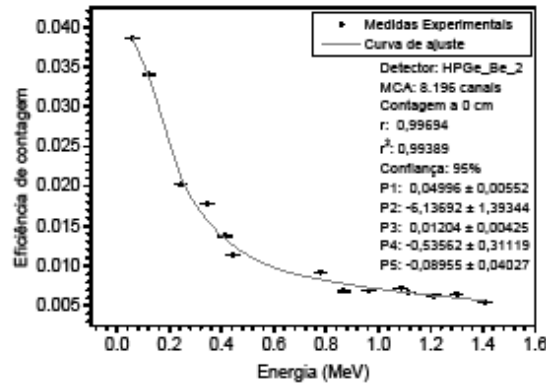


Figura 5. Curva de eficiência para contagens realizadas a 0 cm no detector HPGe MCA 8.196 canais.

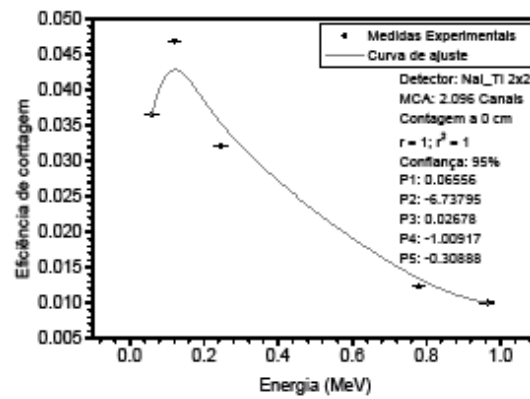


Figura 6. Curva de eficiência para contagens realizadas a 0 cm no detector NaI(Tl) MCA 2.096 canais.

Os ajustes das curvas foram realizados com base em um software, que possibilitou estabelecer os parâmetros utilizados nas correções das eficiências de contagens. Com os parâmetros obtidos a partir desse software, foi deduzida a Equação 8, que permite calcular as eficiências de contagens ajustadas para os diferentes fotopicos utilizados, estabelecendo-se com base nesta, os cálculos das atividades dos radionuclídeos propostos.

$$\varepsilon = (p_1 \cdot e^{E \cdot p_2} + p_3 \cdot e^{E \cdot p_4}) \cdot e^{-(a_1 \cdot E^{a_2} + a_3 \cdot E^{a_4}) \cdot p_5} \quad (8)$$

onde: ϵ é a eficiência de contagem; p_1, p_2, p_3, p_4 e p_5 , são os parâmetros definidos pelo software para o ajuste da curva; E é a energia para a qual deseja-se calcular a eficiência de contagem; a_1, a_2, a_3 e a_4 são os parâmetros utilizados na caracterização do detector.

4.4. Limites de detecção

Como apresentado no item 3.5, observou-se que o limite mínimo de detecção depende dos parâmetros calculados pela Equação 5, sendo imprescindível para medidas de baixo nível de detecção na faixa de emissão em estudo. A Equação 5 foi utilizada para determinar os limites de detecção (LDs) para as energias utilizadas na análise do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K . Os valores dos LDs foram ajustados conforme os parâmetros de correção fornecidos pelos modelos matemáticos apresentados nas Figuras 7 e 8. Para os detectores HPGe (ver Figura 7) e NaI(Tl) (ver Figura 8), a função Sigmoidal Boltzman foi a que apresentou o melhor ajuste para os dados experimentais. Neste caso, os valores dos limites de detecção corrigidos (LDC) foram calculados usando a Equação 9. Onde: A_1 , A_2 , x_0 e dx representam os parâmetros de correção fornecidos pelo software.

$$LD_C = \frac{A_1 - A_2}{1 + e^{(x-x_0)/dx}} + A_2 \quad (9)$$

A Tabela 2 apresenta os valores dos limites de detecção calculados pela Equação 5 e corrigidos com o uso da Equação 9, para os fotopicos utilizados na determinação das concentrações do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , em termos de atividades específicas (Bq.kg^{-1}).

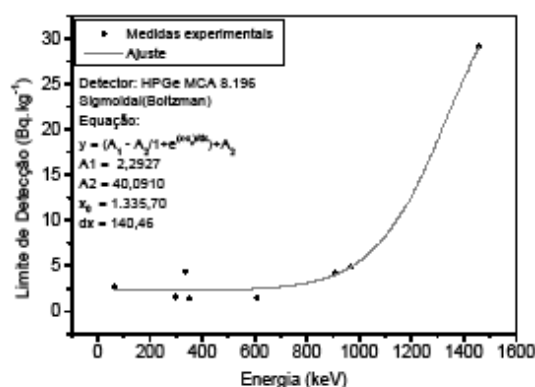


Figura 7: Correção dos limites de detecção dos fotopicos para o HPGe.

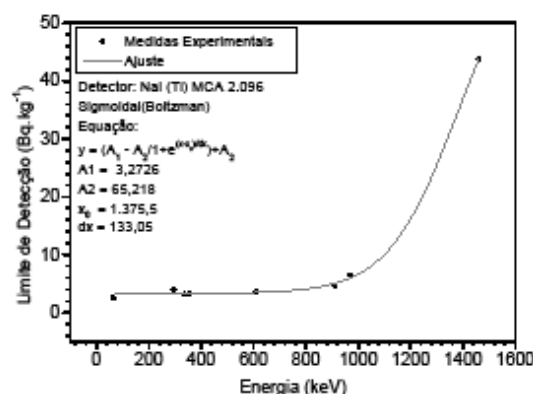


Figura 8: Correção dos limites de detecção dos fotopicos para NaI(Tl).

Tabela 2. Limites de detecção e limites de detecção corrigidos para o ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K (Bq.kg^{-1}).

RADIONUCLÍDEO	HPGe		NaI(Tl)	
	LD (Bq.kg^{-1})	LDc (Bq.kg^{-1})	LD (Bq.kg^{-1})	LDc (Bq.kg^{-1})
^{238}U	2,7	2,3	2,5	3,3
^{232}Th	4,5	3,8	4,7	4,8
^{40}K	29,1	29,1	43,9	43,9

LD: Limite de detecção; LDc: Limite de detecção corrigido.

A Figura 9 mostra o comportamento dos valores do LDc para os detectores HPGe e NaI(Tl). De acordo com o teste t-Student, em relação aos radionuclídeos ^{238}U e ^{232}Th , não houve diferença significativa entre os valores de LD e LDc medidos nos detectores HPGe e NaI(Tl) (ver Tabela 2). Por outro lado, usando também o t-Student, observa-se diferença significativa nos valores LD e LDc na medida do ^{40}K . No presente trabalho, foram utilizados os limites de detecção corrigidos como os valores mais representativos.

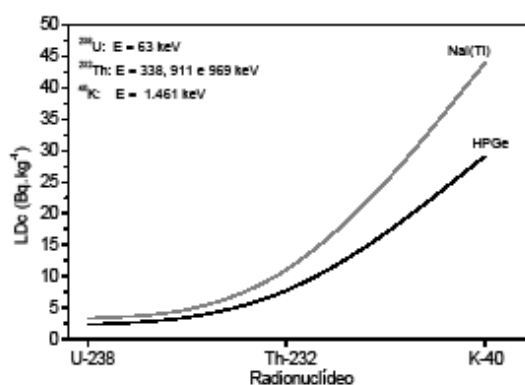


Figura 9. LDc para o HPGe e o NaI(Tl) no cálculo do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K .

4.5. Validação da resposta dos detectores HPGe e NaI(Tl)

Para certificar os procedimentos metodológicos, visando obter um alto grau de precisão nos cálculos das atividades específicas, avaliou-se a resposta dos detectores para energias baixas e altas, utilizando para tanto, fontes padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu . Para minimizar o efeito da auto-absorção, foram preparados padrões com adição de atividades conhecidas de ^{241}Am e ^{152}Eu . Neste caso, as amostras padrões tinham as mesmas composições das amostras analisadas, e também, passaram pelos mesmos procedimentos de padronização, tais como: massa, volume, tempo de contagem e geometria. A Tabela 3 apresenta os valores das atividades dos padrões certificados, chamadas de atividades referência (A_{ref}) e seus valores obtidos experimentalmente em função das curvas de eficiência (A_{exp}). Para o ^{241}Am utilizou-se o fotopico gama de 59,54 keV com 36,00% de probabilidade de emissão, ou seja, o fotopico de maior abundância. No caso do ^{152}Eu foram utilizadas as linhas gamas de 121,78 keV (28,37%); 344,28 keV (26,57%); 1.408,02 keV (20,85%) e 1.112,09 keV (13,54%), seguindo as recomendações do TECDOC 619 da IAEA [8].

Tabela 3: Atividades específicas médias dos padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu .

PADRÃO	HPGe		NaI(Tl) 2x2	
	$A_{\text{ref}} (\text{kBq.kg}^{-1})$	$A_{\text{exp}} (\text{kBq.kg}^{-1})$	$A_{\text{ref}} (\text{kBq.kg}^{-1})$	$A_{\text{exp}} (\text{kBq.kg}^{-1})$
^{241}Am	78,20	80,02	78,08	21,86
^{152}Eu	3,91	3,90	3,70	3,59

Como mostra a Tabela 3, para o detector HPGe, não houve diferença significativa (usando o teste t-Student) entre os valores de referências e os valores experimentais, respectivamente, para os padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu . Para o ^{241}Am em baixa energia, o desvio padrão foi de aproximadamente $1,29 \text{ kBq.kg}^{-1}$ com erro padrão média de 1,63%. No caso do ^{152}Eu (energias superiores a 100 keV), houve excelente concordância entre a atividade de referência e a atividade experimental. Neste caso, o desvio padrão associado foi apenas $0,0071 \text{ kBq.kg}^{-1}$, que para as condições radioecológicas, tal valor pode ser considerado desprezível.

Para o detector NaI(Tl), no caso do ^{241}Am (energia de 59,54 keV), observa-se grande discrepância entre o valor de referência e o valor experimental, cujo desvio padrão associado foi de $39,75 \text{ kBq.kg}^{-1}$, com erro médio de aproximadamente 51% (considerado extremamente elevado para os padrões radioecológicos). No caso do ^{152}Eu (energia superior a 100 keV), não houve diferença significativa (usando o teste t-Student) entre os valores referência e experimental. O desvio padrão associado foi de $0,078 \text{ kBq.kg}^{-1}$, com erro médio de aproximadamente 2%. Comparando os valores de referência e experimental para ambos os detectores, no caso dos padrões de ^{152}Eu , esses valores podem ser considerados estatisticamente iguais, segundo o teste t-Student.

4.6. Medidas das atividades específicas de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo

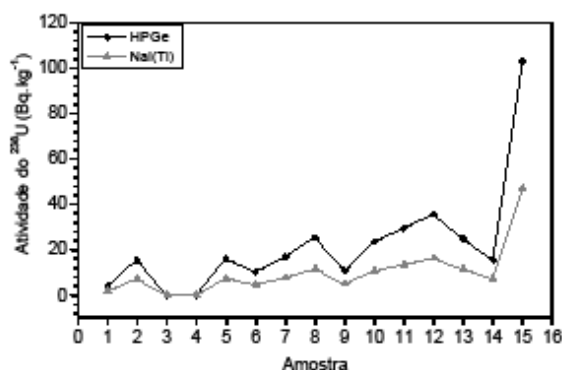
Para verificar o comportamento real das medidas obtidas pelos detectores HPGe e NaI(Tl), utilizou-se quinze amostras de solo. A Tabela 4 apresenta os valores das atividades específicas de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K determinadas pelos detectores HPGe e NaI(Tl). O comportamento gráfico dessas atividades é apresentado nas Figuras 10, 11 e 12. Na determinação do ^{238}U foi utilizada a energia de 63 keV do ^{234}Th , considerando o equilíbrio radioativo secular. O ^{232}Th foi determinado utilizando-se as energias de 338, 911 e 969 keV do ^{228}Ac . O ^{40}K foi determinado diretamente pelo seu fotopico gama de 1.461 keV.

Tabela 4: Atividades específicas médias de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo.

CÓDIGO	ATIVIDADE (Bq.kg^{-1}) HPGe			ATIVIDADE (Bq.kg^{-1}) NaI(Tl)		
	U-238	Th-232	K-40	U-238	Th-232	K-40
01	3,9 $\pm$ 0,3	5,2 $\pm$ 0,2	105,5 $\pm$ 1,2	1,8 $\pm$ 0,2	3,6 $\pm$ 0,2	93,8 $\pm$ 1,1
02	15,6 $\pm$ 0,7	60,3 $\pm$ 0,6	540,8 $\pm$ 2,0	7,1 $\pm$ 0,3	40,6 $\pm$ 0,4	480,7 $\pm$ 1,8
03	< LD	39,9 $\pm$ 0,7	610,3 $\pm$ 2,3	< LD	40,4 $\pm$ 0,5	542,5 $\pm$ 2,1
04	< LD	78,8 $\pm$ 0,6	138,2 $\pm$ 1,5	< LD	53,1 $\pm$ 0,4	122,8 $\pm$ 1,3
05	16,0 $\pm$ 0,6	195,6 $\pm$ 0,7	157,4 $\pm$ 1,4	7,3 $\pm$ 0,3	131,3 $\pm$ 0,5	139,9 $\pm$ 1,2
06	10,4 $\pm$ 0,5	191,9 $\pm$ 0,7	173,5 $\pm$ 1,3	4,7 $\pm$ 0,2	129,0 $\pm$ 0,4	154,2 $\pm$ 1,2
07	16,9 $\pm$ 0,6	241,5 $\pm$ 0,7	175,1 $\pm$ 1,4	7,7 $\pm$ 0,3	162,6 $\pm$ 0,5	155,6 $\pm$ 1,2
08	25,4 $\pm$ 0,7	218,2 $\pm$ 0,7	172,2 $\pm$ 1,4	11,6 $\pm$ 0,3	146,9 $\pm$ 0,5	153,1 $\pm$ 1,2
09	10,9 $\pm$ 0,7	257,5 $\pm$ 0,7	168,3 $\pm$ 1,4	5,0 $\pm$ 0,3	173,3 $\pm$ 0,5	149,6 $\pm$ 1,2
10	23,5 $\pm$ 0,6	284,1 $\pm$ 0,7	171,2 $\pm$ 1,4	10,7 $\pm$ 0,3	190,7 $\pm$ 0,5	152,1 $\pm$ 1,3
11	29,5 $\pm$ 1,0	197,3 $\pm$ 1,0	647,4 $\pm$ 2,7	13,4 $\pm$ 0,4	132,9 $\pm$ 0,5	575,5 $\pm$ 2,4
12	35,7 $\pm$ 0,8	219,8 $\pm$ 0,8	537,5 $\pm$ 2,1	16,2 $\pm$ 0,4	147,9 $\pm$ 0,5	477,8 $\pm$ 1,8
13	24,8 $\pm$ 0,9	275,6 $\pm$ 0,8	490,9 $\pm$ 2,1	11,3 $\pm$ 0,4	185,0 $\pm$ 0,6	436,3 $\pm$ 1,9
14	15,6 $\pm$ 0,6	21,1 $\pm$ 0,5	359,5 $\pm$ 1,9	7,1 $\pm$ 0,3	14,4 $\pm$ 0,3	319,6 $\pm$ 1,6
15	103,1 $\pm$ 1,1	1.761,0 $\pm$ 1,2	331,4 $\pm$ 2,2	46,9 $\pm$ 0,5	1.183,0 $\pm$ 0,8	294,6 $\pm$ 1,9

LD = Limite de detecção.

De acordo com as Figuras 10, 11 e 12, observa-se que, a maior discrepância entre os valores das atividades específicas medidas com os detectores HPGe e o NaI(Tl), ocorreram para o ^{238}U , enquanto que as menores discrepâncias para o ^{40}K . Observou-se também discrepância nas medidas das atividades específicas do ^{232}Th . Entretanto, menos acentuada do que no caso do ^{238}U . Tal como ocorreu no comportamento das amostras padrões de ^{241}Am e ^{152}Eu , em relação a respostas dos detectores HPGe e NaI(Tl), verificou-se também para as medidas das atividades específicas do ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras de solo analisadas. Isto mostra que, quanto menor for a energia emitida pelo radionuclídeo, maior será a discrepância das atividades calculadas para os detectores, e conseqüentemente, o erro associado será elevado. Comparando as medidas dos valores dos desvios padrões das atividades específicas para os detectores HPGe e NaI(Tl), em relação aos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , foram obtidos os seguintes erros: 53,0%, 27,7% e 8,3%, respectivamente. Sendo assim, as atividades específicas do ^{40}K e do ^{232}Th apresentaram menores flutuações do que o ^{238}U .

Figura 10: Comportamento das atividades específicas do ^{238}U em amostras de solo medidas pelos detectores HPGe e NaI(Tl).

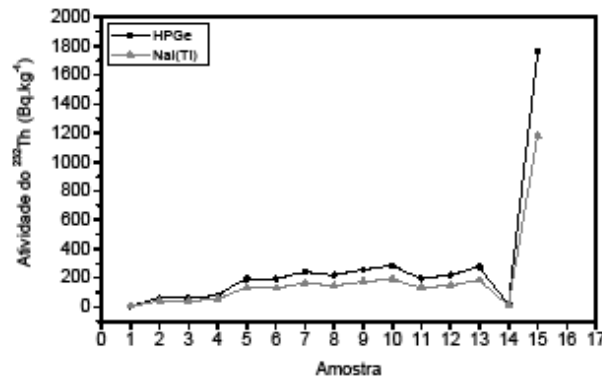


Figura 11: Comportamento das atividades específicas do ^{232}Th em amostras de solo medidas pelos detectores HPGe e NaI(Tl).

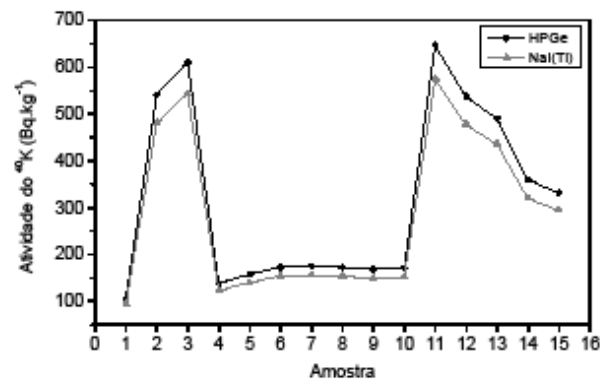


Figura 12: Comportamento das atividades específicas do ^{40}K em amostras de solo medidas pelos detectores HPGe e NaI(Tl).

4.7. Estabilidade do sistema de medidas

A Tabela 5 apresenta as flutuações dos sistemas de medidas, HPGe e NaI(Tl) com base na identificação dos fotopicos pelo canal central. O coeficiente de variação (CV) de Poisson foi utilizado para estimar a estabilidade (flutuações) dos sistemas de medidas. O valor do CV foi calculado em função do desvio padrão e do valor médio da posição dos canais centrais nos fotopicos. Neste caso, os valores de CV foram calculados para os fotopicos de 63, 338, 911, 969 e 1.461 keV (utilizados para os cálculos das atividades experimentais das quinze amostras de solo).

Pode-se observar na Tabela 5, que as maiores flutuações foram observadas em todas as medidas realizadas com o detector NaI(Tl). Isto sugere que, o detector NaI(Tl) é mais instável que o detector HPGe. Verifica-se também que, as flutuações diminuem à medida que aumenta a energia do fóton, ou seja, as maiores interferências encontram-se localizadas para as baixas energias, conforme apresentado na literatura científica [14]. Apesar de tudo isso, para os padrões radioecológicos, os valores dos coeficientes de variação de Poisson apresentados na Tabela 5 mostraram que, as flutuações em relação ao canal central para as amostras de solo analisadas, foram considerados desprezíveis, tanto para o HPGe, quanto para o NaI(Tl).

Tabela 5: Coeficientes de variação de Poisson nos canais centrais do HPGe e NaI(Tl).

ENERGIA (keV)	COEFICIENTE DE VARIAÇÃO (%)	
	HPGe	NaI(Tl)
63	0,33188	1,38228
338	0,02991	1,20548
911	0,02753	0,16478
969	0,02775	0,21722
1.461	0,03226	0,15515

5. CONCLUSÃO

Nas medidas das atividades específicas dos radionuclídeos ^{238}U e ^{232}Th , o detector HPGe apresentou resposta muito superior aquelas apresentadas pelo detector NaI(Tl). Em estudos de espectrometria gama de baixa energia, o detector NaI(Tl) deve ser utilizado apenas para avaliações qualitativas. Na determinação das atividades específicas do ^{40}K não foram verificadas grandes discrepâncias nos valores das concentrações. Admite-se a utilização quantitativa do detector NaI(Tl) em espectrometria gama, desde que os emissores sejam de energias gama elevadas. Os resultados obtidos no presente estudo mostraram que o detector HPGe deve ser mais indicado do que o detector NaI(Tl) em pesquisas envolvendo espectrometria gama dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras ambientais.

1. O. B. FLORES, A. M. ESTRADA, J. T. ZERQUERA. Natural radioactivity in some building materials in Cuba and their contribution to the indoor gamma dose rate. *Radiat Prot Dosimetry*. 113:218-222 (2005).
2. C. A. PAPACHRISTODOULOU, P. A. ASSIMAKOPOULOS, N. E. PATRONIS, K. G. IOANNIDES. Use of HPGe γ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. *J Environ Radioact*. 64:195-203 (2003).
3. A. MALANCA, V. PESSINA, G. DALLARA. Assesment of the natural radioactivity in the Brazilian State of Rio Grande do Norte. *Health Phys*. 65:298-302 (1993).
4. J. RÓDENAS, A. PASCUAL, I. ZARZA, V. SERRADELL, J. ORTIZ, L. BALLESTEROS. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method *Nucl Instr and Meth in Phys Research*. 496:390-399 (2003).
5. L. C. SUJO, M. E. M. CABRERA, L. VILLALBA, M. R. VILLALOBOS, E. T. MOYE, M. G. LEÓN, R. GARCIA-TENORIO, F. M. GARCÍA, E. F. H. PERAZA, D. S. AROCHE. Uranium-238 e thorium-232 series concentrations in soil, radon-222 indoor and drinking water concentrations and dose assessment in the city of Aldama, Chihuahua, Mexico. *J Environ Radioact*. 77:205-219 (2004).
6. H. CEMBER. *Introduction to Health Physics*. 3 ed. McGraw-Hill, New York (1996).
7. J. P. BOLIVAR, R. GARCÍA-TENORIO, M. GARCÍA-LEÓN. A method for the determination of counting efficiencies in γ -spectrometric measurements with HPGe detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*. v. 382, p. 495-502 (1996).
8. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). X ray and gamma-ray standards for detector calibration. IAEA publication, technical report: *TECDOC 619*, INSS 1011-4289, Vienna, 157p (1991).

9. M. TZORTZIS; H. TSERTOS; S. CHRISTOFIDES; G. CHRISTODOULIDES. Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks. *Radiation Measurements*. 37:221-229 (2003).
10. I. R. MCAULAY; D. MORAN. Natural radioactivity in soil in the republic of Ireland. *Radiation Protection Dosimetry*. 24:47-49 (1988).
11. R. N. SANTOS; L. S. MARQUES. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ and $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ activity ratios of Cameroon volcanic line: investigation of secular radioactive disequilibrium in the ^{238}U and ^{232}Th decay series. In: South American Symposium on Isotope Geology, 4., 2003, Salvador. *Anais*. Salvador: CBPM; IRD, p. 675-678 (2003).
12. CANBERRA. *The system 100 user's manual*. Version 3.0. [S.I.]: Canberra, Paginação irregular (1990).
13. V. SCHEIBEL; C. R. APPOLONI. Medida de traços radioativos em alimentos de exportação do Paraná. In: International Nuclear Atlantic Conference - INAC, IV National Meeting on Nuclear Applications, 2002, Rio de Janeiro, RJ, Brazil. *CD ROM*. São Paulo: ABEN – CNEN – IPEN – Fábrica da Imagem Interativa (2002).
14. G. F. KNOLL. *Radiation Detection and Measurement*. John Wiley & Sons, New York (1989).
15. F. de CAMARGO. *Fatores que influenciam a resolução em energia na espectrometria de partículas alfa com diodos de Si*. Dissertação de Mestrado em Pesquisas Energéticas e Nucleares, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 124 p (2005).

APÊNDICE C – Trabalhos submetidos

SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C.; BEZERRA, J. D. Evaluation of the equivalent radium in environmental studies. **Radiation Measurements**. Data de submissão: 05/08/2009, Número de registro: RADMEAS-D-09-00224, 42 p.

Manuscript Number:

Title: EVALUATION OF THE EQUIVALENT RADIUM IN ENVIRONMENTAL STUDIES

Article Type: Full Length Article

Keywords: Equivalent radium, environment dosimetry, environment radioactive, radioecologic monitoring, gamma spectrometry.

Corresponding Author: EVALUATION EQUIVALENT RADIUM IN... José Araújo dos Santos Júnior, M.D.

Corresponding Author's Institution: UFPE

First Author: José Araújo S Júnior, M.D.

Order of Authors: José Araújo S Júnior, M.D.; Romilton S Amaral, PhD; Cleomacio M Silva, PhD; Jairo D Bezerra, Student; Rômulo Simões C Menezes, PhD

Abstract: The natural radioactivity of a uranium-anomalous area utilized for agricultural activities was monitored. The collected samples were analyzed by high-resolution gamma spectrometry. The equivalent radium (R_{eq}) was used as a reference for estimating the rate of the effective equivalent dose, with the analysis of samples from the granite and calcium-silicate amphibole rocks underlying this area and also from samples of the soil derived from these rocks. The average, minimum and maximum values were of 319.2 Bq/kg (91.1-758.5 Bq/kg) for soil; 327.5 Bq/kg (36.3-1,624.0 Bq/kg) for granitic rocks and 70,124.5 Bq/kg (16,979.6-147,159.0 Bq/kg) for the calcium-silicate amphibole rocks. An estimative of the external exposition was carried out based on the calculation of the obtained parameters.

Recife, August 5, 2009

Dear Editor **Radiation Measurements**,

We are submitting attached a manuscript entitled "Evaluation of the equivalent radium in environmental studies" to be considered for publication in **Radiation Measurements**. The work presented in the manuscript discusses about important aspects of the use of natural radionuclides in environmental monitoring, where we correlate the levels of Equivalent Radium, as an attempt to characterize the natural radioactive sources of a soil with unusually high radioactivity levels in the state of Pernambuco, Brazil.

All authors of this research make part of the Grupo de Radioecologia (RAE) from Departamento de Energia Nuclear (DEN) of Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), where they develop research on environmental radioactivity, mainly in the monitoring of natural radionuclides in the environment. The techniques employed in our laboratories include high resolution gama spectrometry for the analysis of radionuclides in soil samples, rocks, cacterization of granites, analysis of food for exportation, materials for civil construction, among others.

We hope that this manuscript will be an useful contribution to the studies published in **Radiation Measurements**. We look forward to hearing from you.

Sincerely yours,

José Araújo dos Santos Júnior

MSc., Nuclear and Energy Technology

Federal University of Pernambuco, Brazil

EVALUATION OF THE EQUIVALENT RADIUM IN ENVIRONMENTAL STUDIES

J.A. Santos Júnior¹, R.S. Amaral, C.M. Silva, R.S.C. Menezes, J. D. Bezerra

Universidade Federal de Pernambuco, Departamento de Energia Nuclear, Grupo de Radioecologia (RAE). Avenida Professor Luiz Freire, 1000, Cidade Universitária, 50740-540, Recife - PE, Brasil.
Fone: (+55) 81 2126-8252, Fax: (+55) 81 21268250.

¹ Corresponding author: Universidade Federal de Pernambuco, Departamento de Energia Nuclear - Avenida Professor Luiz Freire, 1000, Cidade Universitária, 50740-540, Recife - PE, Brasil. Fone: (+55) 81 2126-8252, Fax: (+55) 81 2126-8250, e-mail: jaraujo@ufpe.br.

Abstract

The natural radioactivity of a uranium-anomalous area utilized for agricultural activities was monitored. The collected samples were analyzed by high-resolution gamma spectrometry. The equivalent radium (Ra_{eq}) was used as a reference for estimating the rate of the effective equivalent dose, with the analysis of samples from the granite and calcium-silicate amphibole rocks underlying this area and also from samples of the soil derived from these rocks. The average, minimum and maximum values were of 319.2 Bq.kg^{-1} ($91.1\text{--}758.5 \text{ Bq.kg}^{-1}$) for soil; 327.5 Bq.kg^{-1} ($36.3\text{--}1,624.0 \text{ Bq.kg}^{-1}$) for granitic rocks and $70,124.5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ ($16,979.6\text{--}147,159.0 \text{ Bq.kg}^{-1}$) for the calcium-silicate amphibole rocks. An estimative of the external exposition was carried out based on the calculation of the obtained parameters.

Keywords: Equivalent radium, environment dosimetry, environment radioactive, radioecologic monitoring, gamma spectrometry.

1. Introduction

Natural radioactivity is associated mainly to primordial radionuclides, including the elements belonging to the U-238, Th-232 and K-40 series (Tzortzis and Tsertos, 2004). The levels of the radionuclides are in a certain way influenced by the geological formation, where their concentrations in the soil depend of the type of rock or sediment that originated the soil. The igneous rocks of granitic composition are known in the literature for containing high levels of Th and U, with an average of $15 \mu\text{g.g}^{-1}$ of Th and $5 \mu\text{g.g}^{-1}$ of U (Tzortzis and Tsertos, 2004). Studies have shown that high levels of radiation are associated to igneous rocks and low levels to sedimentary rocks (Anjos et al., 2005). Other rocks such as schists and phosphatic rocks may also present high levels of radioactive minerals. However, as for calcium-silicate amphibole rocks, a type of metamorphous rock, there are no reports in the literature about elevated levels of radioactivity.

According to the UNSCEAR (1993) apud Kannan et al. (2002), approximately 87% of the radiation dose received by mankind is due to natural radiation sources and the rest is due to anthropogenic radioactivity. Some areas in Austria, Brazil, France, India and Iran present high levels of natural radiation, which causes a greater exposure of living beings to ionizing radiation, therefore demanding monitoring activities to allow the proper application of radioprotection principles. The awareness of the natural and anthropogenic radiation levels is becoming an evermore essential pre-requirement for the evaluation and control of the doses to which living beings are exposed (Kannan et al., 2002).

A feasible way to analyze radionuclides in the environment is to utilize high-resolution gamma spectrometry. By this methodology, the determination of ^{226}Ra and ^{232}Th is carried out in an indirect way using the radioactive secular equilibrium. In order to determine ^{226}Ra , most authors utilize the gamma photopeaks of 295 and 352 keV of ^{214}Pb and 609 keV of ^{214}Bi , whereas for the ^{232}Th , the gamma transitions of 338, 911 and 969 keV of ^{228}Ac are normally used (Papachristodoulou et al., 2003; Karangelos et al., 2004). On the other hand, ^{40}K is calculated directly by its 1,461 keV gamma photopeak. By the calculation of the specific experimental activities, it is possible to assess the rate of effective equivalent dose 1 m from the surface by the calculation of the Equivalent Radium (Ra_{eq}), also called radium equivalent activity (Flores et al., 2005). For the calculation of the

Equivalent Radium, it is necessary to take into consideration that the distribution of the analyzed radionuclides is not uniform. The calculation of the Ra_{eq} is carried out by the measurement of the main natural radionuclides that produce external exposure originated by gamma emitters (Ahmed, 2005). For this calculation, the gamma activities of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K are utilized, with an evaluation of the radiological risk conditions.

According to the literature (Ahmed, 2005), it is considered that 370 Bq.kg^{-1} of Ra_{eq} activity produces a rate of effective equivalent dose of 1.5 mSv/year (UNSCEAR, 1982 apud Ahmed, 2005). This dose is greater than the allowed limit for an individual, therefore, for monitoring purposes, the threshold value must remain inferior to 370 Bq.kg^{-1} (Oresegun and Babalola, 1988 apud Ahmed, 2005).

Considering the Ra_{eq} as a way to assess the external exposure, and taking into consideration that the most widely used international parameter in radiological protection for radiological risk assessment is the effective equivalent dose, the objective of the present study was to calculate the radium equivalent activity of the studied area aiming to estimate the external dose rate to which living beings are subjected. The rate of the effective equivalent dose takes into consideration the different sensibilities of organs and tissues to ionizing radiation, employing the ALARA concept (As Low As Reasonably Achievable) as a principle of radiological protection, the same that is used world-wide to estimate alterations in the radioactivity levels in the environment.

2. Materials and Methods

2.1. Description of the studied areas, collection and treatment of samples

In order to estimate the dose rate by the Ra_{eq} , 80 samples, including soil, granitic rocks, and calcium-silicate amphibole rocks, were collected from an area of approximately 170 ha, located in the municipality of Pedra, about 275 km distant from Recife. The municipality belongs to the micro-region of the Vale do Ipanema in the semi-arid region of the state of Pernambuco, Brazil (Figure 1). This area is situated in the domains of Ipanema river's hydrographical basin, has an average annual temperature of 22.9°C and natural

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

vegetation classified as caatinga, a thorn-bush tropical dry forest. Agriculture and cattle raising represent 65.3% of the region's economic activities, being dairy farming the municipality's main source of income, with an estimated monthly production of 2,160,000 liters of milk (AMUPE, 2007; FIDEM, 2008). The uranium-anomalous areas studied are located within dairy farms on the coordinates 08°37.693'S and 36°55.220'W, at an altitude of approximately 593 m above sea level.

The primary location of this area and its first studies were carried out from 1974 to 1975 by the Brazilian Nuclear Company (NUCLEBRAS), subsidiary of the Nuclear Energy National Commission (CNEN). In those studies, areas with high levels of uranium (an average of 22,000 $\mu\text{g.g}^{-1}$) were located. Since the purpose of these initiatives was exclusively to determine the economical viability of exploring the uranium, which was not the case for this particular site, the studies were discontinued. Only in 2003, studies for the verification of the ^{238}U and ^{226}Ra disposition in the soil adjacent to the anomalous areas were carried out, allowing observations regarding the migration of these radionuclides to the soil, in order to verify the effects of anthropic interference in the dissemination of radionuclides and environmental contamination (Santos Júnior et al., 2006). Based on the results obtained from previous studies, and considering the importance of monitoring the levels of natural radioactivity, the present study was carried out.

For the collection of the samples used in this study, some criteria were established: the sampling was of a systematical type and the soil collection points were standardized as 0,5 m², previously marked and carefully cleaned. Because of the type of climate in the region and in order to avoid possible anthropogenic interferences, each soil sample was collected from an average depth of 50 cm, right above the C horizon. This sampling was done so that we would have a better identification and utilization of the soil certainly originated from the different parent-material rocks. For the collection of rock samples, the weathered rock layer was discarded, thus preserving the original rock and discarding the soil adhered to the surface of the rock samples. The granitic rocks and the calcium-silicate amphibole rocks are predominant in the studied area. The sample collection points are shown in Figure 1, where all samples were identified by codes, including the two farms with effectively uranium-anomalous calci-silicate amphibole rocks (A1 and A2).

In the laboratory, the soil samples were dried in a greenhouse, passed through a 1-mm sieve, homogenized, and quartered. After this, 250 g of each sample were stored in hermetically sealed polyethylene recipients. For the rock samples, the same treatment criteria used for the soil was applied, except for the mass, which was of 300 g, so that the volume of the samples in the recipients was standardized, considering the differences between their densities.

INSERT FIGURE 1 HERE

Considering that, for each sampled point, approximately 2.5 kg were collected, it was possible to calculate the relative standard deviation (σ_r) due to the sampling for the sample amount submitted to analysis (Equation 1):

$$\sigma_r = \sqrt{k_{am} / m} \quad (1)$$

where k_{am} is the sampling constant, that is, the sample mass needed to reduce the sampling standard deviation and m is the amount of the sample utilized for the analysis. The average standard deviation that was calculated by the presented parameters was of approximately 3 g ($2,500 \pm 3.0$) g.

Before the gamma analysis was carried out, the recipients remained hermetically sealed for a minimum of 30 days, in order to establish the radioactive secular equilibrium between the radionuclides of short half-lives. As it is known, the establishment of this balance is necessary, because in order to determine the activities of certain radionuclides, such as the ^{226}Ra , the photopeaks of ^{214}Pb and ^{214}Bi (descendants of the ^{218}Po , which, in turn, is a descendant of the ^{222}Rn) are utilized.

2.2. Measurements systems

The experimental configuration utilized (Figure 2) features a measurement system with a Canberra® hyperpure germanium (HPGe) detector of the BeGe (Broad Energy Germanium) type, with an active volume of 41.1 cm^3 , 1.77 keV resolution for the 1,332

keV energy of the ^{60}Co , intrinsic relative efficiency of approximately 30%, coupled to a pre-amplifier 2002 CSL MCA (multichannel analyzer) model with about 8k channels, photo-multiplier operating at around 3,000 V and Genie®-2000 Canberra® software. In order to reduce the effects of BG interference, the detector was covered with a Pb shield with low background radiation, approximately 6.5 cm thick and with a thin inner surface made of a Cu and Zn alloy.

INSERT FIGURE 2 HERE

For the analysis of the radionuclides, we used the gamma photopeaks of smallest interference probability described in the literature. For the quantification of the ^{226}Ra , the 295 and 352 keV gammas of the ^{214}Pb with emission probabilities ($\gamma\%$) of 18.50% and 35.80%, respectively, and 609 keV of the ^{214}Bi ($\gamma\%$ of 44.80%). For the analysis of the ^{232}Th , the photopeaks of 338, 911 and 969 keV of the ^{228}Ac were used ($\gamma\%$ of 11.30%, 26.60% and 16.20%, respectively), considering the value of the weighted average activity as the most representative. The ^{40}K was calculated by its gamma line of 1,461 keV with 10.67% of emission probability.

2.3. Calibration curve

Figure 3 shows the calibration curve of the measurement system, built by the measurement of a ^{152}Eu standard, in accordance with the energies recommended by the International Atomic Energy Agency (IAEA), as described in the technical document TECDOC-619 (IAEA, 1991).

INSERT FIGURE 3 HERE

Based on the adjustment of the experimental data, the measurements coincide with the theoretical straight line, rendering an excellent adjustment ($R = 1.0$). Equation 2 represents the adjusted linear function of the line in Figure 3, where E is the gamma energy

of the radionuclide of interest and C is the channel that registers the photopeak of the gamma emitter present in the sample.

$$E(\text{MeV}) = 77,80 - 2,55 \times C \times 10^{-4} \quad (2)$$

2.4. Resolution

Resolution in energy is considered to be the most important parameter in defining the response function of the detector. It is, by definition, calculated based on the measurement of the photopeak width at half of the maximum height (FWHM: Full Width at Half Maximum), considering that the height of the pulses is distributed in an approximately normal manner around an average value. The value of the resolution in energy can be obtained through Equation 3 (Knoll, 1989), where R is the resolution in energy; FWHM, the measurement of the width of the photopeak at half of the maximum height, and E is the photopeak's average energy. Small values of R mean the system has good resolution in energy, therefore energies with close peaks may be discriminated.

$$R = (FWHM / E) \times 100 \quad (3)$$

As expected, Figure 4 clearly shows a better system resolution for the energy applied in quantifying ^{40}K (0.12%), followed by ^{232}Th (0.23%) and by ^{226}Ra (0.29%). It is also possible to observe that, as the energy range utilized for the quantification of these radionuclides goes from 295 keV to 1.46 MeV, that is, above 200 keV, the resolution in energy significantly improves in all cases. This fact can be better observed through the value of the linear correlation coefficient, which was close to 0.99, therefore showing an excellent correlation between the experimentally determined values and the expected theoretical curve.

INSERT FIGURE 4 HERE

2.5. Efficiency curve

Figure 5 shows the efficiency curve that was obtained experimentally by the patterns of ^{241}Am and ^{152}Eu . The dead time was used as a reference for the adjustment of the counting geometry.

The improvement of the curve was accomplished using the software which enabled us to establish parameters for the adjustments of the counting efficiency. The curve adjustment was well defined, as seen by the values of the regression and linear correlation coefficients, which were approximately 1.0. From Equation 4, it was possible to calculate the efficiencies of the adjusted countings for the energies utilized in the calculation of the ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K .

$$\varepsilon = (p_1 \cdot e^{E/p_2} - p_3 \cdot e^{E/p_4}) \cdot e^{-\mu \cdot E/p_5} \quad (4)$$

INSERT FIGURE 5 HERE

On Equation 4, ε stands for the counting efficiency; p_1 , p_2 , p_3 , p_4 and p_5 , the parameters defined by the software for the adjustment of the curve; E , the energy for which we wish to calculate the counting efficiency, and μ , the coefficient of mass attenuation, defined by Equation 5, considering a_1 , a_2 , a_3 and a_4 the parameters used to describe the characteristics of the detector.

$$\mu = a_1 \cdot E^{a_2} + a_3 \cdot E^{a_4} \quad (5)$$

Table 1 displays the values of the parameters that were used for calculating the counting efficiency through the adjustment which was executed on the experimental curve of Figure 5. The counting efficiencies were calculated with the direct application of the constants reported on Table 1, corrected for the energy interval located between 50 keV and 1.6 MeV (by extrapolation).

INSERT TABLE 1 HERE

2.6. Calculation of the activities

For the calculation of specific activities, Equation 6 (IAEA, 1989) was employed:

$$A = N_{Ei} / \varepsilon \times I_{\gamma} \times t \times m \quad (6)$$

where A is the activity determined for the each specific radionuclide (Bg.kg^{-1}); N_{Ei} is the total liquid area of the photopeak for the radionuclide at the considered energy (countings), experimentally determined with the gamma spectroscopy system; ε is the counting efficiency for the specific energy considered ($\varepsilon \leq 1$); t is the counting time (s); I_{γ} is the gamma abundance of the considered radionuclide ($I_{\gamma} \leq 1$); and m is the mass of the analyzed sample (kg).

2.7. Calculation of the pondered activities of ^{226}Ra and ^{232}Th

As previously mentioned, the calculation of the activities of ^{226}Ra and ^{232}Th was carried out as suggested by Equation 7 (Scheibel, 2006), considering the weighted mean obtained due to the photopeaks utilized in the quantification of these radionuclides.

$$\bar{A} = \frac{(A_1 / \sigma_1^2) + (A_2 / \sigma_2^2) + (A_3 / \sigma_3^2)}{(1 / \sigma_1^2) + (1 / \sigma_2^2) + (1 / \sigma_3^2)} \quad (7)$$

where A_1 , A_2 and A_3 are the activities obtained for ^{226}Ra by employing the photopeaks of 295, 352 and 609 keV, and for ^{232}Th based on the gamma lines of 338, 911 and 969 keV; and σ_1 , σ_2 and σ_3 are the respective mean standard deviations.

2.8. Detection limit

The minimum detection limit (DL) for a gamma spectrometer represents its capacity to detect a gamma photon in the presence of interferents, such as background radiation, Compton scattering, noises from the measurement system, among others. The DL is going to depend on the type of sample to be analyzed, the radiation energy, the counting geometry, the type of detector, the system's background and the counting time (Scheibel, 2006).

In order to calculate the detection limit, the empty recipient and the background radiation were measured and Equation 8 (reformulated from 1989 IAEA) was applied:

$$LD = 4,66 \times \sigma \quad (8)$$

where σ stands for the standard deviation associated to the photopeak of interest and 4.66 is the factor correspondent to a level of trust equal to 95%.

For the defined experimental configuration, the detection limits for ^{226}Ra , ^{232}Th , ^{40}K and for Ra_{eq} activity (Table 2) were calculated.

INSERT TABLE 2 HERE

According to Table 2, ^{232}Th shows the lowest detection limit (0.2 Bq.kg^{-1}), so that smaller concentrations cannot be detected. For ^{226}Ra , the DL was of 0.8 Bq.kg^{-1} , whereas ^{40}K displayed the highest DL (2.8 Bq.kg^{-1}). For the Ra_{eq} , the DL was of 1.4 Bq.kg^{-1} and depends on the detection limits of the three radionuclides used in its calculation.

2.9. Equivalent Radium

As seen on the introductory part of this paper, the equivalent radium activity, or simply equivalent radium (Ra_{eq}), is a parameter utilized to estimate the external exposure due to the contribution of gamma emitters from the ^{238}U (^{226}Ra), ^{232}Th and ^{40}K series. Equation 9 was used for the calculation of the Ra_{eq} (Flores et al., 2005):

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1,43A_{Th} + 0,077A_K \quad (9)$$

where A_{Ra} , A_{Th} and A_K are, respectively, the radiological concentrations or specific activities obtained for ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K , using $Bq.kg^{-1}$ as measurement unit.

3. Results

Initially, the gamma spectra were analyzed for the identification of the presence of radionuclides of interest in each type of sample (soil, granitic rocks and calcium-silicate amphibole rocks). Upon identifying the presence of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K , the specific activities were calculated and, consequently, the dose estimate was based on the Ra_{eq} calculation. Figures 6, 7, 8 and 9 show the spectra that were obtained for the calcium-silicate amphibole rock samples from area A2, for granitic rocks from area A1, and for soil collected from around the occurrences in A2 and A1 (see Figure 1), respectively. The spectrum in Figure 6 shows high intensities for the ^{234}Th photopeaks (63 keV), used for measurements of ^{226}Ra . The photopeaks of ^{228}Ac (338, 911 and 969 keV), which are used for the qualification and quantification of ^{232}Th , and the ^{40}K photopeaks (1,461 keV) are practically absent, that is, inferior to the detection limit.

INSERT FIGURE 6 HERE

Figure 7 shows the spectrum for the granitic rock sample collected from area A1, where a high counting was observed for the photopeaks which quantify indirectly the presence of ^{232}Th (338, 911 and 969 keV) and directly the presence of ^{40}K (1,461 keV). It was also observed that the photopeaks utilized for identifying ^{238}U (63 keV) and ^{226}Ra (295, 352 and 609 keV), are much less intense when compared to those seen on Figure 6.

INSERT FIGURE 7 HERE

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

Figure 8 displays the gamma spectrum for a soil sample collected close to the biggest uranium anomalous occurrence (area A2). The radionuclides present in this sample are directly associated with the radionuclides found in the anomalous calcium-silicate amphibole, that is, high concentrations of ^{238}U and ^{226}Ra and low concentrations of ^{232}Th and ^{40}K .

For the spectrum shown in Figure 9, from soil samples collected adjacent to area A1, the behavior of the radionuclide emissions is different, that is, with photopeaks formed for ^{238}U and ^{226}Ra , but with intense photopeaks for ^{232}Th and ^{40}K , which practically are not present in the calcium-silicate amphibole from areas A1 and A2 (Figure 6) and are associated to coarse granite (Figure 7).

INSERT FIGURES 1 AND 2 HERE

The previously displayed spectra give us an idea of the previous radionuclide distribution throughout the studied area, which characterizes the existence of other radioactive sources besides the uranium-anomalous rocks that provide ^{232}Th and ^{40}K to the soil. As observed by the presented spectra, the granite and the soil that were analyzed have shown high concentrations of ^{232}Th and ^{40}K , not present in the calcium-silicate amphibole. In order to confirm if this behavior is predominant throughout the studied area, 80 samples that included soil, granite and calcium-silicate amphibole rocks found in the studied area were analyzed.

Due to the different concentrations of the radionuclides present, the statistical treatment of the results was done separately, considering the analysis of the soil, and the granite and the calcium-silicate amphibole rocks. The activities of the ^{226}Ra and ^{232}Th were adopted as weighted means, based on the photopeaks and standard deviations for different gamma energies proposed in the determination of these radionuclides. For justifying the use of the weighted means in the evaluation of the activities of ^{226}Ra and ^{232}Th , the representativeness of these averages was observed by applying the chi-squared (χ^2) test. Each value was compared to its respective critical $\chi^2_{0.05}$ value, with 95% confidence for n-1 degrees of freedom. The null hypothesis in this case states that individual experimental specific activities are well adjusted by the averages. According to the χ^2 distribution, the

values for the calculated activities of ^{226}Ra and ^{232}Th are below the critical value ($\chi^2_c = 0.352$), with a certainty of at least 95%, therefore, the individual activities are well adjusted to the weighted mean, thus justifying their use.

Table 3 displays the results of the radium equivalent that were obtained for the soil (S), granite (RG) and calcium-silicate amphibole (RA) samples. In this table, the codes attributed to each sample, the coordinates of each collected point, the individual calculation of Ra_{eq} for ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K , and the total value of the Ra_{eq} considering the contribution of the relevant radionuclides are all reported.

For a better interpretation of the results, Table 4 provides a descriptive statistics summary (N = number of collected samples, Z = minimum value, Q = maximum value, $\bar{X}$ = arithmetic average, $\tilde{X}$ = median, $\hat{X}$ = mode, and σ = mean standard deviation).

INSERT TABLE 3 HERE

For the purpose of data analysis and interpretation, the average arithmetical values and their associated standard deviations were considered for discussion of the results, taking into consideration the soil and rocks samples, in order to compare the results with values obtained in other studies conducted world-wide. For the soil samples, a population arithmetic average of 319.2 Bq.kg^{-1} was obtained with an average standard error of 45.9%, which enabled us to see that the individual results that were calculated for the soil samples differed significantly for the data set analyzed. In the granitic rock samples, the average value associated to the data set was 327.5 Bq.kg^{-1} with a standard error of 139.6%, a more accentuated difference.

Considering the samples of the calcium-silicate amphibole, an average value of $70,124.5 \text{ Bq.kg}^{-1}$ and an average error of 78.1% were obtained. By the gathered data, it is possible to perceive a greater divergence in the radium equivalent values obtained for the granitic samples and a smaller sample fluctuation for the results obtained for the soil samples.

INSERT TABLE 4 HERE

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

The χ^2 test allowed us to observe more clearly the behavior of the results for the soil and rock samples. By the results, it was observed that the values in the three sets of samples are greater than the critical value, therefore, differ significantly throughout the area.

Figure 10 displays the Ra_{eq} behavior that was observed during the previously performed tests, considering the three sets of samples: S, GR and AR. Due to the discrepancies among the obtained values, especially for AR when compared to the results for S and GR, the values displayed on Figure 10 were expressed in the logarithmic scale.

The averages calculated for the S and RG samples are statistically equal, but with different amplitudes, that is, for the soil there is an amplitude of 667.4 Bq.kg^{-1} and of $1,587.7 \text{ Bq.kg}^{-1}$ for granitic rocks. However, for the calcium-silicate amphibole, the amplitude was of $130,179.1 \text{ Bq.kg}^{-1}$. As for the Ra_{eq} values observed for the calcium-silicate amphibole, they were extremely different with a high amplitude and a far greater mean.

INSERT FIGURE 10 HERE

Figure 11 shows the contribution of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K for the calculation of the Ra_{eq} . The analysis of the data in this figure shows a greater contribution of the ^{232}Th for the soil samples with approximately 71% of the total exposure coming from primordial radioelements of this radioactive series, the granitic rocks remain with 17% and the calcium-silicate amphibole with only 1%.

The greatest contribution due to ^{226}Ra was observed in the calcium-silicate amphibole samples, with an average of approximately 99%, followed by the soil samples with 8% and the granites with only 2%. Considering the uranium anomaly found in the calcium-silicate amphibole, this ^{226}Ra behavior was expected for this type of rock. The greatest contribution of ^{40}K was observed for the granites with 81%, followed by the soil with 21%, where the uranium-anomalous rocks displayed a percentage below the detection limit, in which case 0% is attributed. It is important to highlight that granitic rocks are known in the literature for displaying high levels of total potassium, which leads to higher concentrations of K-40 in this type of rock.

INSERT FIGURE 11 HERE

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

Based on the data displayed on Figure 11, it was possible to estimate the occurrence of a thorium source distributed throughout the studied area, given that there is practically no Th associated to the calcium-silicate amphibole, which is effectively anomalous in natural uranium.

A way to evaluate the gathered results is the comparison with other studies carried out around the world, with mean values at the Earth's crust level and with referential values for normality, published by certified organizations, such as the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR) and the International Atomic Energy Agency (IAEA). Table 5 shows the mean values for Ra_{eq} in the samples obtained in the present study and compares them to other observations on a global level. These values point out that the metamorphic amphibole evaluated in the present study presented greater Ra_{eq} values than the remaining studies that were reported in the literature. Due to the lack of available data that would enable us to establish criteria for the comparison with other calcium-silicate amphibole samples, we obtained from the literature the concentrations of radionuclides in phosphatic rocks (Khan et al., 1988, Abbady et al., 2005), for which usually high levels of primordial radionuclides are found, and compared these values with the amphibole of the present study.

INSERT TABLE 5 HERE

The values that were obtained in the present study are effectively superior to the values reported in the literature consulted. The values for coarse granite found in this study do not diverge significantly from those reported by Xinwei et al. (2006) in China, but the Ra_{eq} average reported by these authors, obtained for one of the studied granite types, was inferior to the results of the present study. The values that were found for the soil in the present study were superior to the global average (UNSCEAR, 2000), as well as to other studies carried out in China and Brazil that were cited by Ahmed and El-Arabi (2005).

4. Conclusion

In the present study, the dose rate estimate obtained with the radium equivalent values indicated that, for the soil and granitic rock samples, the observed values were inferior to the maximum recommended limit (370 Bq.kg^{-1}). On the other hand, the calcium-silicate amphibole presented Ra_{eq} values that varied from 16,980 a $147,159 \text{ Bq.kg}^{-1}$, with an average of $70.125 \text{ Bq.kg}^{-1}$, which is about 189.5 times superior to the maximum recommended limit, with a variation from 46 to 398 times. Having those values as references in the estimation of the effective equivalent dose, and considering the safety of the human population of the studied area, it is suggested that the areas where the calcium-silicate amphibole rocks are located should be avoided or seldom utilized, and that the derived soil should be monitored through time in order to observe the behavior of these radionuclides in face of the influence of environmental and anthropogenic disturbances.

Acknowledgments

This research work was partially funded by The National Council for Scientific and Technological Development (CNPq), Brazil, which provided a graduate scholarship to the first author of this article. The authors thank Professor Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso (in memorian) for the scientific contribution to this research work.

References

Abbady, A. G. E., Uosif, M. A. M., El-Taher A., 2005. Natural radioactivity and dose assessment for phosphate rocks from Wadi El-Mashash and El-Mahamid Mines, Egypt. J. Environ. Radioact. 84, 65-78.

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

Ahmed, N. K., El-Arabi, A. G. M., 2005. Natural radioactivity in farm soil and phosphate fertilizer and its environmental implications in Qena governorate, Upper Egypt. *J. Environ. Radioact.* 84, 51-64.

AMUPE, 2007. Associação Municipalista de Pernambuco. Disponível em: <<http://www.amupe.org.br>>. Acesso em 24/06/2008.

El-Arabi, A. M., 2005. Natural radioactivity in sand used in thermal therapy at the Red Sea Coast. *J. Environ. Radioact.* 81, 11-19.

FIDEM. Agência Estadual de Planejamento e Pesquisas. Disponível em: <<http://www.condepefidem.pe.gov.br>>. Acesso em 24/06/2008.

Flores, O. B., Estrada, A. M., Zerquera, J. T., 2005. Natural radioactivity in some building materials in Cuba and their contribution to the indoor gamma dose rate. *Radiat. Prot. Dosim.* 113, 218-222.

International Atomic Energy Agency (IAEA), 1989. Measurements of radionuclides in food and the environ, Technical Reports Series 295, Vienna.

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

Kannan, V., Rajan, M. P., Iyengar, M. A. R., Ramesh, R., 2002. Distribution of natural and antropogenia radionuclides in soil and beach sand simples of Kalpakkam (India) using hyper pure germanium (HPGe) gamma ray spectrometry. *Appl. Radiat. Isot.* 57, 109-119.

Karangelos, D. J., Anagnostakis, M. J., Hinis, E. P., Simopoulos, S. E., Zunic, Z. S., 2004. Determination of depleted uranium in environmental samples by gamma-spectroscopic techniques. *J. Environ. Radioact.* 76, 295-310.

1
2
3
4 Khan, K., Khan, H. M., Tufail, M., Khatibeh, A. J. A. H., Ahmad, N., 1988. Radiometric
5 analysis of Hazara phosphate rock and fertilizers in Pakistan. J. Environ. Radioact. 35, 7-
6 84.
7
8
9

10
11 Knoll, G. F., 1989. Radiation Detection and easurement. 2 ed. New York, John Wiley &
12 Sons, 754 pp.
13
14
15

16
17 Santos Júnior, J. A., Cardoso, J. J. R. F., Silva, C. M., Silveira, S. V., Amaral, R. S. 2006.
18 Determination of radionuclides in the environment using gamma-spectrometry. J.
19 Radioanal. Nucl. Chem. 269, 451-455.
20
21
22

23
24 Papachristodoulou, C. A., Assimakopoulos, P. A., Patronis, N. E., Ioannides, K. G., 2003.
25 Use of HPGe γ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. J.
26 Environ. Radioact. 64, 195-203.
27
28
29

30
31 Scheibel, V. Determinação das doses efetivas por ingestão de farinhas de cereais através da
32 espectrometria de raios gama. 2006. 159p. Tese (Doutorado em Física), Departamento de
33 Física, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2006.
34
35
36

37
38 Seddeek, M. K., Badran, H.M., Sharshar, T., Elnimr, T., 2005. Characteristics, spatial
39 distribution and vertical profile of gamma-ray emitting radionuclides in the coastal
40 environment of North Sinai. J. Environ. Radioact. 84, 21-50.
41
42
43
44

45
46 Tzortzis, M., Tsertos, H., Christofides, S., Christodoulides, G., 2003. Gamma-ray
47 measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks.
48 Radiat. Meas. 37, 221-229.
49
50
51

52
53 Tzortzis, M., Tsertos, H., 2004. Determination of thorium, uranium and potassium
54 elemental concentrations in surface soils in Cyprus. J. Environ. Radioact. 77, 325-338.
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

1
2
3
4
5
6
7
8
9
10
11
12
13
14
15
16
17
18
19
20
21
22
23
24
25
26
27
28
29
30
31
32
33
34
35
36
37
38
39
40
41
42
43
44
45
46
47
48
49
50
51
52
53
54
55
56
57
58
59
60
61
62
63
64
65

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation),
1982. Ionizing radiation: sources and biological effects. United Nations, New York.

UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation),
2000. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly with
Annexes, United Nations, New York.

Xinwei, L., Lingqing, W., Xiaodan, J. 2006. Radiometric analysis of Chinese commercial
granites. J. Radioanal. Nucl. Chem. 267, 669-673.

Yasir, M. S., Majid, A. Ab, Yahaya, R., 2007. Study of natural radionuclides and its
radiation hazard index in Malaysian building materials. J. Radioanal. Nucl. Chem. 273,
539-541.

Figures

Figure Legend:

Figure 1. Location of the studied area and distribution of sampling points. A1 and A2 are the areas with uranium-anomalous rocks.

Figure 2. Measurement system.

Figure 3. Calibration curve

Figure 4. Resolution in energy per radionuclide.

Figure 5. Efficiency curve.

Figure 6. Gamma spectrum of the calc-silicate amphibolitic rock in A2.

Figure 7. Gamma spectrum of the granitic rock in A1.

Figure 8. Gamma spectrum for the soil from A2.

Figure 9. Gamma spectrum for soil sample from area A1.

Figure 10. Distribution of the Ra_{aq} for soil (S), granite (GR), and calcium-silicate amphibole (AR) samples.

Figure 11. Average contribution of ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K for the calculation of the Ra_{aq} for soil, granite and calcium-silicate amphibole samples.

Figure 1.

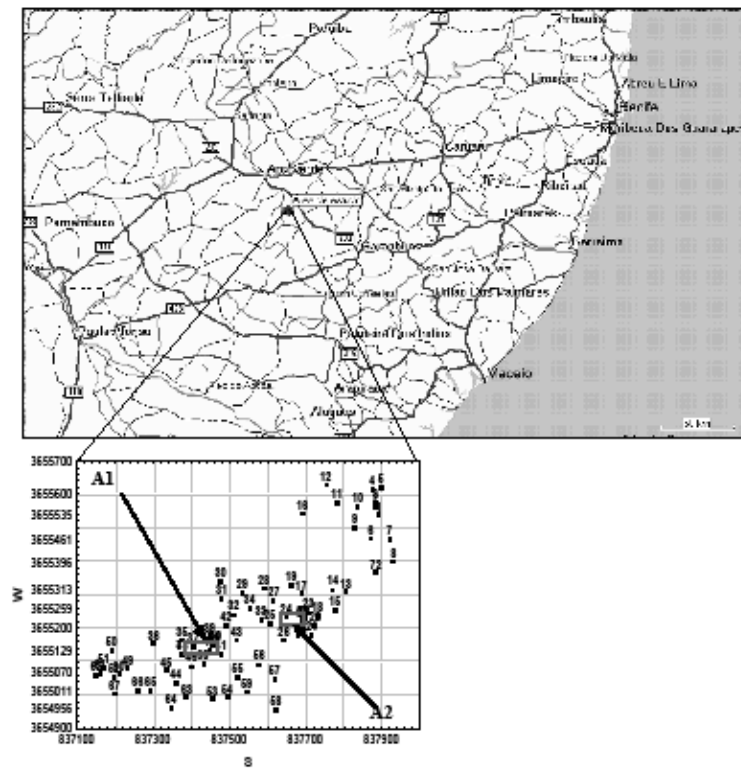
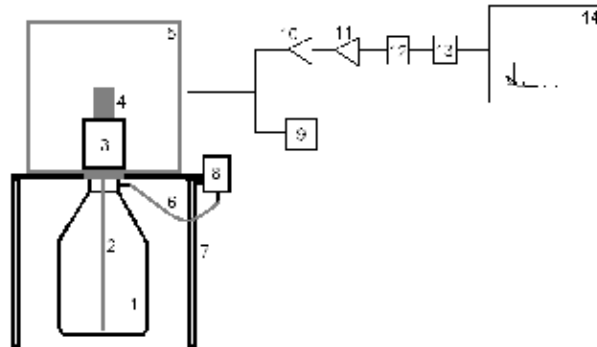


Figure 2.



(1) N₂(1) recipient; (2) Cu rod for cooling the HPGe; (3) HPGe detector; (4) Sample in a polyethylene recipient; (5) Pb shield; (6) Hose for transferring N₂(1); (7) Pb shield support; (8) N₂(1) feeder; (9) High voltage photomultiplier; (10) Pre-amplifier; (11) Amplifier; (12) ADC; (13) MCA; (14) Spectrum in the computing system.

Figure 3

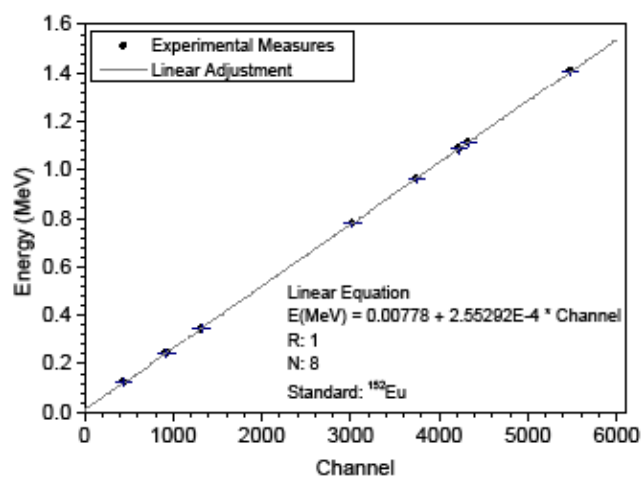


Figure 4.

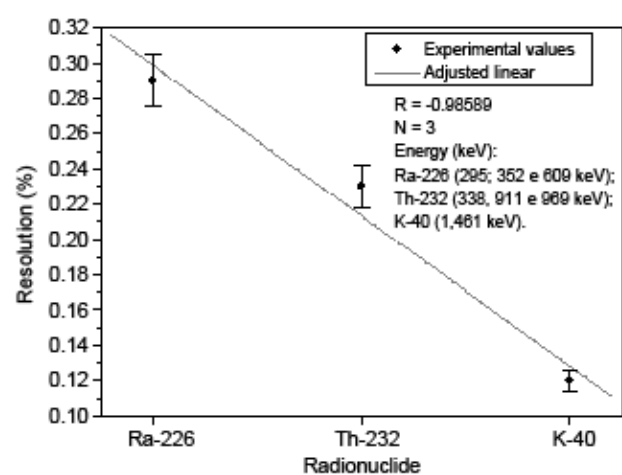


Figure 5.

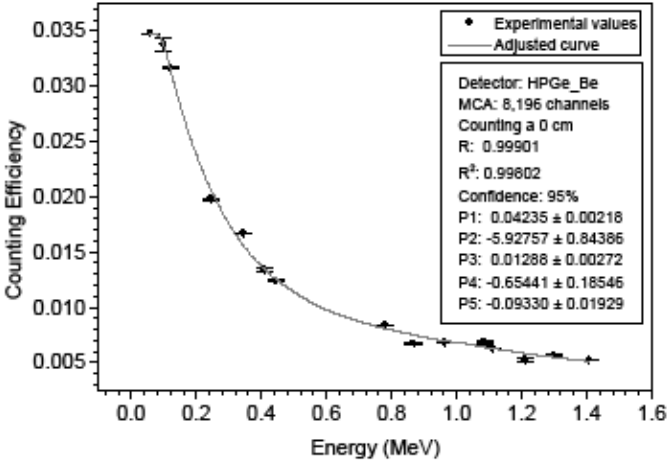


Figure 6.

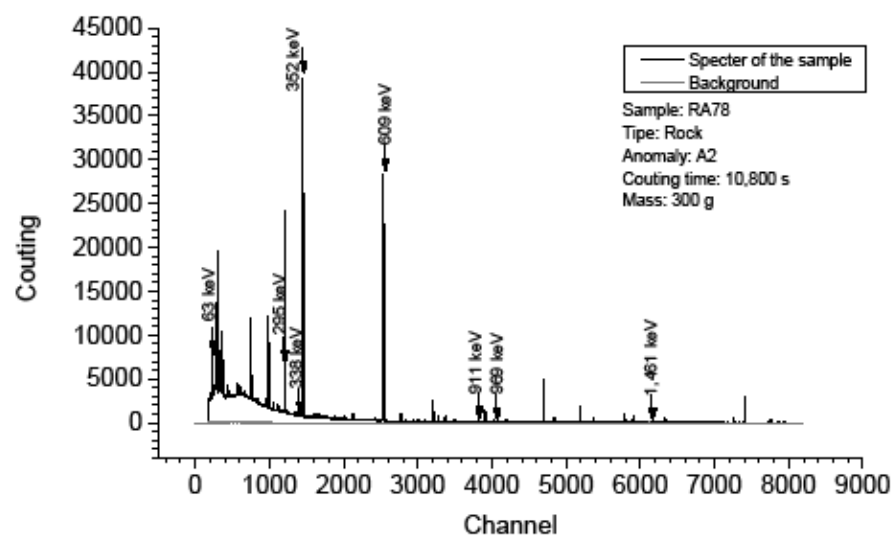


Figure 7.

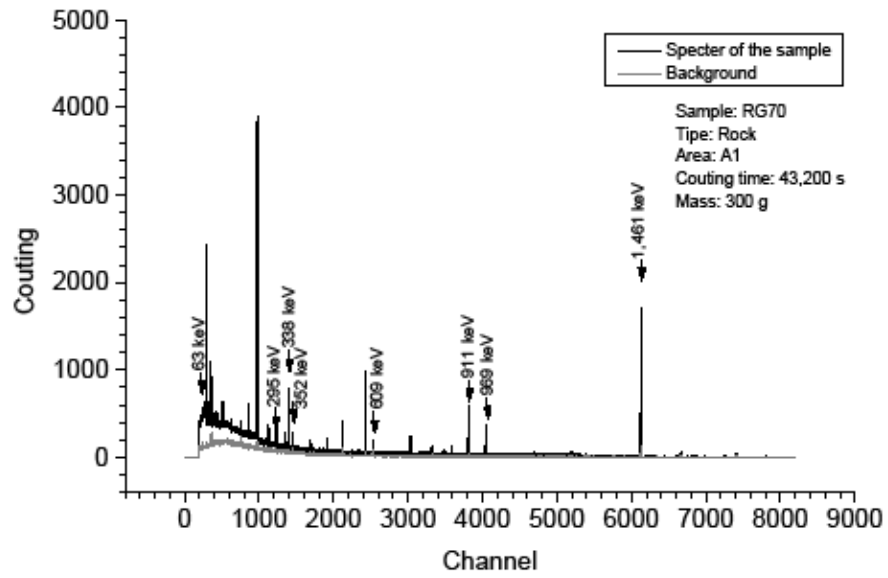


Figure 8.

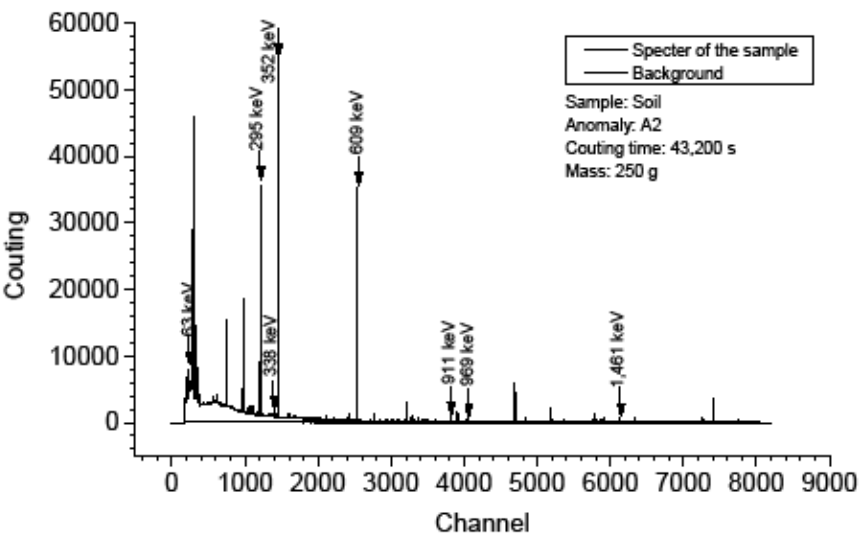


Figure 9.

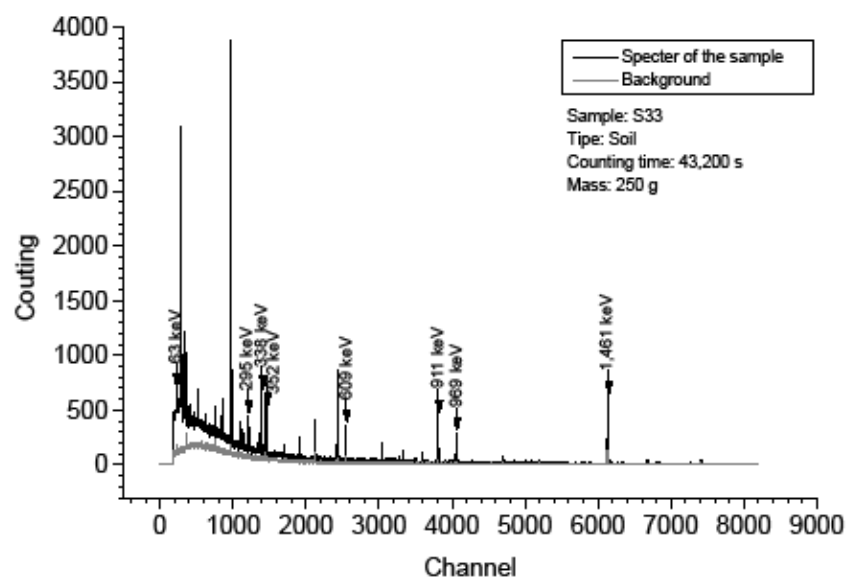


Figure 10.

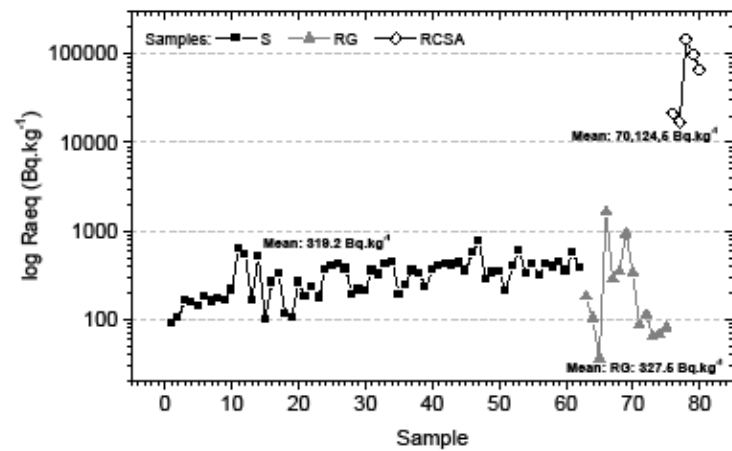
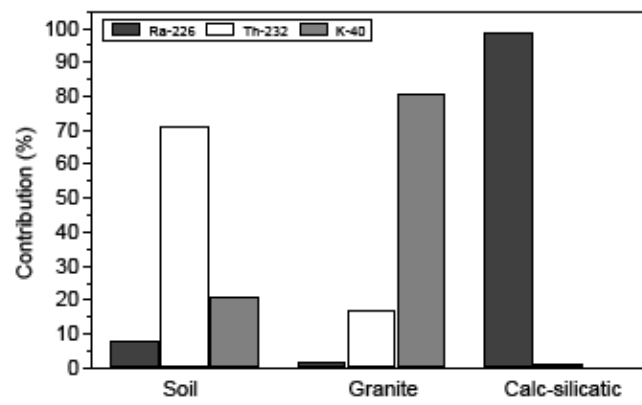


Figure 11.



Tables

Table Legend:

Table 1. Parameters used for the adjustment of the efficiencies.

Table 2. DLs for the studied radionuclides and for the Ra_{eq} .

Table 3. Radium equivalent results for the soil, granite and calcium-silicate amphibole samples.

Table 4. Descriptive statistic for the values of Ra_{eq} on the analyzed samples.

Table 5. Comparison between the average Ra_{eq} values and results gathered from around the world.

Table 1.

ADJUSTMENT	PARAMETER	VALUE $\pm$ ERROR
CURVE (p)	p ₁	0.042 $\pm$ 0.002
	p ₂	-5.928 $\pm$ 0.844
	p ₃	0.013 $\pm$ 0.003
	p ₄	-0.654 $\pm$ 0.186
	p ₅	-0.093 $\pm$ 0.019
DETECTOR (a)	a ₁	0.0587
	a ₂	-0.4160
	a ₃	0.0005
	a ₄	-2.9430

Table 2.

RADIONUCLIDES	DL (Bq.kg ⁻¹)
Ra-226	0.8
Th-232	0.2
K-40	2.8
Ra _{eq}	1.4

DL: Detection limit; Ra_{eq}: Equivalent Radium.

Table 3.

CODE	COORDINATED		Contribution of the Ra_{eq} (Bq.kg ⁻¹)			Ra_{eq}
			Ra-226	Th-232	K-40	Bq.kg ⁻¹
S01	S:08°37.885'	W:36°55.573'	12.8	55.4	22.9	91.1 ± 0.3
S02	S:08°37.876'	W:36°55.611'	9.9	64.9	28.5	103.3 ± 0.3
S03	S:08°37.899'	W:36°55.616'	14.2	120.3	30.5	165.0 ± 0.3
S04	S:08°37.872'	W:36°55.466'	11.9	109.2	37.0	158.1 ± 0.3
S05	S:08°37.921'	W:36°55.461'	12.9	100.1	29.3	142.3 ± 0.4
S06	S:08°37.932'	W:36°55.396'	10.3	125.6	47.7	183.6 ± 0.4
S07	S:08°37.831'	W:36°55.497'	9.3	93.4	58.6	161.3 ± 0.4
S08	S:08°37.838'	W:36°55.559'	15.2	111.5	46.4	173.1 ± 0.6
S09	S:08°37.783'	W:36°55.570'	13.8	117.3	32.0	163.1 ± 0.6
S10	S:08°37.754'	W:36°55.623'	15.7	128.4	71.1	215.2 ± 0.6
S11	S:08°37.807'	W:36°55.304'	34.0	484.1	107.9	626.0 ± 0.6
S12	S:08°37.773'	W:36°55.313'	30.2	383.7	125.4	539.3 ± 0.5
S13	S:08°37.778'	W:36°55.250'	15.4	95.7	54.5	165.6 ± 1.0
S14	S:08°37.692'	W:36°55.540'	62.1	277.7	175.1	514.9 ± 0.5
S15	S:08°37.732'	W:36°55.233'	9.1	47.9	42.6	99.6 ± 0.5
S16	S:08°37.663'	W:36°55.325'	44.2	160.4	57.8	262.4 ± 0.4
S17	S:08°37.717'	W:36°55.177'	20.7	214.8	100.6	336.1 ± 1.9
S18	S:08°37.726'	W:36°55.206'	12.7	71.6	31.3	115.6 ± 0.5
S19	S:08°37.709'	W:36°55.244'	12.7	68.1	24.7	105.5 ± 0.5
S20	S:08°37.650'	W:36°55.230'	27.1	190.8	44.5	262.4 ± 0.4
S21	S:08°37.607'	W:36°55.211'	17.1	125.4	36.2	178.7 ± 0.5
S22	S:08°37.644'	W:36°55.162'	34.2	157.3	38.5	230.0 ± 0.5
S23	S:08°37.618'	W:36°55.279'	14.5	87.4	74.3	176.2 ± 0.8
S24	S:08°37.591'	W:36°55.317'	46.7	232.9	84.1	363.7 ± 0.5
S25	S:08°37.535'	W:36°55.302'	53.3	275.0	82.8	411.1 ± 0.5
S26	S:08°37.478'	W:36°55.336'	49.3	274.3	96.9	420.5 ± 0.6
S27	S:08°37.481'	W:36°55.286'	42.6	209.8	121.3	373.7 ± 0.7

(continuation in the following page)

Table 3: (continuation)

S28	S:08° 37.512'	W:36° 55.238'	13.0	102.2	79.6	194.8 ± 0.7
S29	S:08° 37.584'	W:36° 55.221'	20.2	145.3	49.5	215.0 ± 0.5
S30	S:08° 37.554'	W:36° 55.259'	15.2	133.1	65.9	214.2 ± 0.6
S31	S:08° 37.376'	W:36° 55.160'	29.5	241.8	84.3	355.6 ± 0.7
S32	S:08° 37.302'	W:36° 55.149'	33.0	196.8	91.4	321.2 ± 0.7
S33	S:08° 37.406'	W:36° 55.140'	32.7	309.2	79.6	421.5 ± 0.5
S34	S:08° 37.432'	W:36° 55.090'	32.1	333.8	86.9	452.8 ± 0.5
S35	S:08° 37.449'	W:36° 55.172'	15.6	142.6	35.5	193.7 ± 0.4
S36	S:08° 37.465'	W:36° 55.148'	34.0	165.4	45.0	244.4 ± 0.3
S37	S:08° 37.479'	W:36° 55.119'	26.4	241.0	86.7	354.1 ± 0.5
S38	S:08° 37.492'	W:36° 55.206'	20.1	248.8	59.7	328.6 ± 0.5
S39	S:08° 37.520'	W:36° 55.161'	43.9	148.1	43.6	235.6 ± 0.3
S40	S:08° 37.360'	W:36° 55.035'	28.2	260.1	70.8	359.1 ± 0.5
S41	S:08° 37.335'	W:36° 55.070'	30.1	292.9	74.4	397.4 ± 0.5
S42	S:08° 37.401'	W:36° 55.083'	29.8	312.0	83.2	425.0 ± 0.5
S43	S:08° 37.376'	W:36° 55.117'	30.4	292.2	90.2	412.8 ± 0.5
S44	S:08° 37.234'	W:36° 55.074'	28.4	347.1	57.0	432.5 ± 0.5
S45	S:08° 37.192'	W:36° 55.131'	27.3	254.5	73.1	354.9 ± 0.4
S46	S:08° 37.171'	W:36° 55.078'	29.7	483.2	54.8	567.7 ± 1.1
S47	S:08° 37.198'	W:36° 55.049'	39.3	640.8	78.4	758.5 ± 0.5
S48	S:08° 37.456'	W:36° 54.983'	24.6	202.9	54.9	282.4 ± 0.5
S49	S:08° 37.495'	W:36° 54.990'	25.4	240.5	72.7	338.6 ± 0.5
S50	S:08° 37.522'	W:36° 55.052'	24.9	256.0	70.7	351.6 ± 0.5
S51	S:08° 37.619'	W:36° 55.043'	14.6	152.3	41.2	208.1 ± 0.4
S52	S:08° 37.623'	W:36° 55.956'	31.3	300.0	68.1	399.4 ± 0.5
S53	S:08° 37.211'	W:36° 55.058'	33.6	504.9	70.6	609.1 ± 0.5
S54	S:08° 37.161'	W:36° 55.062'	20.1	260.6	45.4	326.1 ± 0.5
S55	S:08° 37.389'	W:36° 54.988'	29.1	311.7	81.5	422.3 ± 0.5
S56	S:08° 37.347'	W:36° 54.958'	18.8	190.5	100.1	309.4 ± 0.9

(continuation in the following page)

Table 3: (continuation)

S57	S:08°37.294'	W:36°55.012'	27.6	299.9	92.5	420.0 ± 0.6
S58	S:08°37.260'	W:36°55.011'	26.3	285.7	82.0	394.0 ± 0.5
S59	S:08°37.199'	W:36°54.999'	32.9	313.7	90.3	436.9 ± 0.5
S60	S:08°36.806'	W:36°54.527'	28.7	250.8	75.9	355.4 ± 0.4
S61	S:08°36.797'	W:36°54.462'	44.3	433.7	100.5	578.5 ± 1.5
S62	S:08°36.768'	W:36°54.428'	23.4	320.9	37.1	381.4 ± 0.6
GR63	S:08°37.893'	W:36°55.535'	5.5	74.2	101.8	181.5 ± 0.4
GR64	S:08°37.885'	W:36°55.563'	50.3	45.1	7.9	103.3 ± 0.3
GR65	S:08°37.689'	W:36°55.299'	0.0	9.9	26.4	36.3 ± 0.2
GR66	S:08°37.448'	W:36°55.129'	33.0	1,467.3	123.7	1,624.0 ± 0.8
GR67	S:08°37.579'	W:36°55.089'	15.6	177.5	92.2	285.3 ± 0.8
GR68	S:08°37.546'	W:36°55.004'	24.5	255.5	66.7	346.7 ± 0.6
GR69	S:08°37.151'	W:36°55.056'	32.6	784.9	116.4	933.9 ± 0.5
GR70	S:08°37.459'	W:36°55.144'	8.4	180.8	146.2	335.4 ± 0.4
GR71	S:08°37.885'	W:36°55.363'	19.8	33.6	33.3	86.7 ± 0.4
GR72	S:08°37.697'	W:36°55.225'	5.8	50.5	56.1	112.4 ± 0.6
GR73	S:08°37.461'	W:36°55.146'	4.6	34.7	24.6	63.9 ± 0.4
GR74	S:08°37.377'	W:36°55.118'	32.1	32.3	2.8	67.2 ± 0.3
GR75	S:08°37.696'	W:36°55.224'	37.4	34.2	9.0	80.6 ± 0.3
AR76			20,923.1	257.1		21,180.2 ± 3.8
AR77			16,897.8	81.8		16,979.6 ± 2.1
AR78	S:08°37.459'	W:36°55.144'	144,437.9	2,721.1	< DL	147,159.0 ± 75.1
AR79			98,770.5	136.3		98,906.8 ± 2.5
AR80			66,121.0	275.8		66,396.8 ± 2.6

S: Soil; GR: Granite; AR: calcium-silicate amphibole; Ra_{eq}: Equivalent Radium;
DL: Detection limit.

Table 4.

<i>PARAMETER</i>	<i>Ra-EQUIVALENT (Bq.kg⁻¹)</i>		
	S	GR	AR
N	62	13	5
Z	91.1	36.3	16,979.9
Q	758.5	1,624.0	147,159.0
$\bar{X}$	319.2	327.5	70,124.5
$\tilde{X}$	332.4	112.4	66,396.8
$\hat{X}$	262.3	195.0	38,676.1
σ	146.5	457.3	54,764.4

S: Soil; GR: Granite; AR: calcium-silicate amphibole;
N: number of collected samples; Z: minimum value;
Q: maximum value; $\bar{X}$: arithmetic average; $\tilde{X}$:
median; $\hat{X}$: mode and σ = mean standard deviation.

Table 5.

STUDY	NOTE	Ra _{eq} (Bq.kg ⁻¹)	REFERENCE
	Soil	319.2	
Pernambuco - Brasil	Coarse granite	327.5	Present study
	Calcium-silicate amphibole	70,124.5	
World-wide	Allowed limit	370.0	UNSCEAR, 1982; Ahmed, 2005; Seddeek et al., 2005
	Global average* - soil	128.7	UNSCEAR, 2000
Pakistan	Phosphatic rocks	527.4	Khan et al., 1988
Egypt	Phosphatic rocks	921.0 1,182.0	Abbady et al., 2005
China	Commercial granites (different types)	124.9 349.4	
China (Zhejiang)	Soil	184.9	Ziqiang et al., 1988 apud Ahmed and El-Arabi, 2005
Brazil	Soil	147.8	Malanca et al., 1993 apud Ahmed e El-Arabi, 2005
Egypt (Safaga)	Sand	103.0	El-Arabi, 2005
Egypt (Hurgada)	Sand	94.0	
Malaysia	Soil used in construction material	104.2	Yasir et al., 2007

* Values estimated based on the reported means for the specific activities of ²²⁶Ra, ²³²Th and ⁴⁰K; Ra_{eq}: Equivalent Radium.

ANEXO A – Meias-vidas e atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

Tabela 25. Meias-vidas e atividades específicas dos radionuclídeos estudados

RADIONUCLÍDEO	Z	$T_{1/2}$ (a)	$T_{1/2}$ (s)	A_{esp} ($\text{Bq}\cdot\text{g}^{-1}$)
U-238	92	$4,468 \times 10^9$	$1,409 \times 10^{17}$	$1,246 \times 10^4$
Ra-226	88	$1,600 \times 10^3$	$5,046 \times 10^{10}$	$3,666 \times 10^{10}$
Th-232	90	$1,405 \times 10^{10}$	$4,431 \times 10^{17}$	$4,066 \times 10^3$
K-40	19	$1,280 \times 10^9$	$4,037 \times 10^{16}$	$2,589 \times 10^5$

IAEA, 2002. Z: Número atômico; $T_{1/2}$: Tempo de meia-vida; A_{esp} : Atividade específica.

ANEXO B – Caracterização dos padrões utilizados.

Tabela 26. Caracterização dos padrões utilizados.

PADRÃO	Z	$t_{1/2}$ (dias)	E (keV)	γ (%)
Am-241	95	1,5785	59,537	36,0
Ba-133	56	3.862	80,998	34,11
			276,398	7,147
			302,853	18,30
			356,017	61,94
Cs-137	55	1,102	383,851	8,905
			661,660	85,1
			14,4127	9,16
Co-57	27	271,79	122,0614	85,60
			136,4743	10,68
			1.173,238	99,857
Co-60	27	1.925,5	1.332,502	99,983
			121,7824	28,37
			244,6989	7,53
Eu-152	63	4.933	344,2811	26,57
			411,126	2,238
			443,965	3,125
			778,903	12,97
			867,390	4,214
			964,055	14,63
			1.085,842	10,13
			1.089,767	1,731
			1.112,087	13,54
			1.212,970	1,412
			1.299,152	1,626
			1.408,022	20,85

IAEA, 1991