

UM ESTUDO SOBRE O DESEQUILÍBRIO RADIOATIVO DA SÉRIE DO URÂNIO EM AMOSTRAS DE SOLO

DANILLO SILVA DE OLIVEIRA

SÃO PAULO – SP 2006

Livros Grátis

http://www.livrosgratis.com.br

Milhares de livros grátis para download.

Danillo Silva de Oliveira

Um estudo sobre o desequilíbrio radioativo da série do urânio em amostras de solo

Orientador: Dr. Fernando Brenha Ribeiro

Dissertação apresentada ao Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas da Universidade de São Paulo para a obtenção do título de Mestre em Ciências em Geofísica.

Oliveira, Danillo Silva de.

Um estudo sobre o desequilíbrio radioativo da série do urânio em amostras de solo. / Danillo Silva de Oliveira; Orientador: Dr. Fernando Brenha Ribeiro. – São Paulo, 2006.

79f.:fig.

Dissertação (Mestrado – Pós-Graduação em Geofísica. Área de concentração: Geofísica Nuclear.) — Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas da Universidade de São Paulo.

1.Rádio 2.Chumbo radioativo 3.Radioatividade do solo. 4.Séries radioativas. I. Título.

CDD 551.9

Agradecimentos

Ao Prof. Dr. Fernando Brenha Ribeiro pela amizade, atenção, confiança, orientação e enorme paciência.

À Profa Leila Soares Marques pelo acompanhamento e colaboração.

Ao Prof. Francisco Yukio Hiodo pela atenção e colaboração na pesquisa.

Ao Jardim Botânico do Estado de São Paulo por pemitir a coleta do solo.

Ao Ernande pela grande ajuda durante a coleta das amostras.

Ao Prof. Joel B. Sígolo pela descrição das amostras.

À Rosana Nunes e ao Roberto Keiji pela colaboração no laboratório.

À Teca, Virgínia e Magda, secretárias do departamento de geofísica, e à Rose, secretária seção da pós-graduação do instituto, pela atenção.

Ao Edilson, Marco e Leonardo, da seção de informática, sempre dispostos a ajudar quando preciso.

Aos amigos Wanderson, Fábio Lucas, Dionísio, Everton, Marcelo Bianchi, Marcelo Peres, Alanna, Welintom, Alexandre Lago, Alexandre Lopes, Robsom, Marcos, Igor, Claúdia, Daniele, Selma, Francisca, Deborah, Manuelle, Érika, Ahmad, Frankiln.

Agradeço à meus pais, Célia e Francisco, minha querida irmã, Danielle, aos meus irmãos, Douglas e Lucas, à minhas tias, tios e ao amigo Arimar, que sempre me apoiam em minhas decisões.

À Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo (FAPESP), processo 2004/03175-7, pelo apoio financeiro.

Resumo

OLIVEIRA, D. S. Um estudo sobre o desequilíbrio radioativo da série do urânio em amostras de solo. 2006. 79 f. Dissertação – Instituto de Astronomia, Geofísica e C. Atmosféricas, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2006.

As atividades específicas do ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³²Th e ⁴⁰K, foram medidas, utilizando-se a técnica de espectrometria- de alta resolução, em amostras de solo coletadas em três furos com 2,10 m e feitas com trado manual. O material amostrado é um latossolo desenvolvido sobre rochas quartzo-feldspáticas. O local da amostragem, no terreno do Instituto de Botânica da Secretaria do Meio Ambiente do Estado de São Paulo, possui uma cobertura vegetal densa que, junto com a camada superficial de solo, não é perturbada desde, pelo menos, 1938. Os 0,60 m superior da camada de solo amostrada corresponde aos horizontes O e A, enquanto que o 1,50 m restante corresponde ao horizonte B.

As medidas de atividade específica do ²¹⁰Pb foram corrigidas para compensar os efeitos da absorção da radiação- com 46,5 keV pela matriz de solo. O procedimento de correção baseado na literatura disponível, foi adaptado com o desenvolvimento de equações apropriadas para representar a geometria de detecção em que as medidas foram realizadas.

Os resultados mostram que as atividades específicas do ²³⁸U e do ²²⁶Ra variam pouco em função da profundidade. O perfil de atividades do ²³⁸U parece refletir a distribuição dos minerais de argila no perfil de solo, enquanto que o perfil de atividades do ²²⁶Ra apresenta um valor praticamente constante em todo o solo analisado. O perfil de atividades do ²¹⁰Pb mostra um leve enriquecimento desse isótopo nos horizontes O e A em relação ao restante do perfil. Com a exceção dos horizontes mais superficiais, o ²²⁶Ra está em desequilíbrio radioativo com o ²³⁸U e o solo apresenta razões de atividade ²²⁶Ra/²³⁸U da ordem de 0,90.

O ²¹⁰Pb está em desequilíbrio radioativo com o ²²⁶Ra sendo que as razões de atividade ²¹⁰Pb/²²⁶Ra variam em torno de 0,7 na maior parte do perfil. A atividade

específica do 210 Pb é inferior à atividade específica do 226 Ra em valores que variam de 8 Bq/kg a 18 Bq/kg.

A séries do ²³²Th está em equilíbrio radioativo secular em todas as amostras analisadas. As atividades específicas mais baixas do ²³²Th são observadas nos horizontes O e A. O horizonte B é enriquecido em ²³²Th o que reflete a maior concentração de argilas nesse horizonte.

O ⁴⁰K está distribuído de forma irregular ao longo do perfil de solo analisado e apresenta atividades específicas variando desde valores abaixo do limite de detecção do laboratório até 37,8 Bq/kg.

Palavras-chave: Rádio, chumbo radioativo, radioatividade do solo, séries radioativas.

Abstract

OLIVEIRA, D. S. Um estudo sobre o desequilíbrio radioativo da série do urânio em amostras de solo. 2006. 79 f. Dissertação – Instituto de Astronomia, Geofísica e C. Atmosféricas, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2006.

The specific activities of ²³⁸U , ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²³²Th and ⁴⁰K were measured, and the ²²⁶Ra/²³⁸U and ²¹⁰Pb/²²⁶Ra activity ratios were calculated for samples collected in a 2.10 m deep soil profile in a preserved area of the São Paulo Botanic Garden. The sampling site is covered by dense vegetation that, together with the upper soil layer, has not been disturbed since, al least, 1938. The upper 0.60 m of the soil profile corresponds to the O and A soil horizons, whereas the remaining 1.50 m of the profile corresponds to the B horizon.

The ²¹⁰Pb specific activity measurements were corrected for the attenuation of the 46.5 keV -radiation by the soil mineral matrix. The attenuation corretion procedure is based in the available literature and was adapted to represent the detection geometry of the measurements.

The results show that the uranium series is in radioactive disequilibrium in most of the sampled soil. The ²²⁶Ra/²³⁸U activity ratios vary about 0.9 whereas the ²¹⁰Pb/²²⁶Ra activity ratios vary about 0.7. The unsupported ²¹⁰Pb specific activities vary between -8 Bq/kg and -18 Bq/kg.

The ²³²Th series is in secular radioactive equilibrium in the whole sampled soil layer. The ²³²Th specific activity distribution seems to reflect the concentration of clay minerals in the soil horizon B.

The ⁴⁰K radionuclede is irregulary distributed in the whole sampled soil layer and has specific activities varying from below detection limit to about 37.8 Bq/kg.

Keywords: soil radioactivity, radium, radioactive lead, radioactive series.

Sumário

Ą	grade	cimentos	
Re	esum	0	
Αl	ostra	ct	
Li	sta d	e Figuras	
Li	sta d	e Tabelas	
1	Intro	odução	p. 15
2	Info	rmações geológicas dos radionuclídeos da série do urânio, da	
	séri	e do tório e do potássio	p. 17
	2.1	Distribuição do urânio, rádio e tório no solo	p. 17
	2.2	Escape do ²²² Rn no solo	p. 19
	2.3	Distribuição do ²¹⁰ Pb no solo e na atmosfera	p. 21
	2.4	Ocorrência do potássio em solos	p. 22
3	Med	lidas de atividade por espectrometria de raios- γ	p. 23
	3.1	Local de coleta das amostras	p. 24
	3.2	Coleta e descrição das amostras	p. 25

	3.3	Preparação das amostras	p. 27
	3.4	Padrões de atividade	p. 28
	3.5	Cálculo da atividade de elementos -emissores em amostras ambi-	
		entais	p. 31
	3.6	Radiação de fundo, níveis críticos e limites de detecção qualitativa	p. 33
4	Ор	roblema da correção do efeito de auto-absorção da radiação- γ	
	emi	tida pelo ²¹⁰ Pb	p. 35
	4.1	Método de correção da auto-absorção na determinação da atividade	
		do ²¹⁰ Pb	p. 36
		4.1.1 A determinação do coeficiente de atenuação linear	p. 36
		4.1.2 A correção do efeito de auto-absorção pela matriz da amostra	p. 40
		4.1.3 Uma estimativa da exatidão do método de correção do efeito	
		de auto-absorção	p. 45
5	Perf	ís de atividade dos radionuclídeos das séries do urânio e do tório	
	e at	vidade do ⁴⁰ K no solo	p. 47
	5.1	Atividade dos radionuclídeos da série do ²³⁸ U	p. 47
	5.2	Atividade dos radionuclídeos da série do ²³² Th	p. 53
	5.3	Atividade do ⁴⁰ K no solo	p. 56
6	Con	clusão	p. 57
Re	eferêi	ncias	p. 59
Αŗ	oêndi	ce A - Modelo teórico para a correção do efeito de auto-absorção	
	da r	adiação do ²¹⁰ Pb - parte I	p. 63

A.1 A equação para estimativa do coeficiente de atenuação linear						
A.2	A aprox	ximação de fonte linear de radiação		p. 67		
	A.2.1	Fórmulas para o cálculo de $E_1(x)$		p. 71		
Apênd	lice B - I	Modelo teórico para a correção do efeito de auto-abso	rção			
•		Modelo teórico para a correção do efeito de auto-abso o do ²¹⁰ Pb - parte II	J	p. 73		
da	radiação	•	•	•		
da В.1	radiação O dese	o do ²¹⁰ Pb - parte II		р. 73		

Lista de Figuras

3.1	Distribuição horizontal dos perfís de amostragem do solo retirado no Instituto	
	de Botânica.	p. 25
4.1	Geometria para o ângulo sólido de um fóton incidente sobre a superfície	
	do detector quando emitido por um padrão radioativo secundário localizado	
	sobre a amostra de solo	p. 37
4.2	Valores da relação $\left(\frac{T}{I}\right)_{\text{calculado}}$, equação 4.3, em função do coeficiente de	
	atenuação linear (), com $e_1 = 3 \text{mm}$, $e_2 = 8;85 \text{mm}$, $E = 46,00 \text{mm}$ e $h =$	
	12,00 mm	p. 39
4.3	Valores do fator de correção da radiação- (G), equação 4.5, em função do	
	coeficiente de atenuação linear (), com A = 37,50 mm, B = 45,00 mm e E =	
	46,00 mm	p. 42
5.1	Atividades específicas do ²³⁸ U (■), do ²²⁶ Ra (♦) e do ²¹⁰ Pb (●), expressas	
	em Bq/kg, como função da profundidade do perfil de solo	p. 50
5.2	Razões de atividade ²²⁶ Ra/ ²³⁸ U (♦) e ²¹⁰ Pb/ ²²⁶ Ra (■) como função da pro-	
	fundidade do solo. A barra de erro vertical representa um desvio padrão, e	
	a barra de erro horizontal a metade do intervalo de amostragem	p. 51
5.3	Concentração do ²¹⁰ Pb não-suportado, em Bq/kg, em função da profundi-	
	dade do solo. A incerta corresponde a um desvio padrão em torno da média.	p. 52
5.4	Atividade específica do ²³² Th como função da profundidade do solo	p. 54

A.1	Geometria para o ângulo sólido de um fóton incidente sobre a superfície	
	do detector quando emitido por um padrão radioativo secundário localizado	
	sobre a amostra de solo	p. 64
A.2	Modelo geométrico com uma aproximação linear para a radiação primária	
	incidente sobre a superfície do detector	p. 68
B.1	Geometria para o ângulo sólido de um fóton incidente sobre a superfície do	
	detector quando emitido por um padrão radioativo secundário sobre o detector.	p. 74

Lista de Tabelas

3.1	Descrição da camada de solo amostrada no terreno do Jardim Botânico de	
	São Paulo, Parque Estadual das Fontes do Ipiranga (baseado na descrição	
	feita pelo Professor Joel B. Sígolo do Instituto de Geociências da USP)	p. 26
3.2	Massa das amostras de solo utilizadas na determinação das atividades nos	
	intervalos de amostragem dos três perfís	p. 27
3.3	Coeficientes de atenuação da radiação- (=massa), expressos em cm²=g,	
	para diferentes energias e diferentes materiais	p. 30
3.4	Características dos padrões secundários utilizados	p. 30
3.5	Contagem da radiação de fundo observadas em um período de 48 horas	
	com o padrão estéril LTGSI05 (quartzo moído), níveis críticos e limites de	
	detecção qualitativa correspondentes aos diversos radionuclídeos utilizados.	p. 34
3.6	Contagem da radiação de fundo, em um período de 48 horas, na região do	
	pico de absorção total do ²¹⁰ Pb com 47,5 keV de energia, nível crítico e	
	limite de detecção qualitativa nos padrões LGTSIPb e LGTCARPb	p. 34
4.1	Comparação entre os valores de T obtidos através da equação 4.1 (fonte	
	extensa) e através da equação 4.2 (fonte linear). Os parâmetros da fonte	
	extensa são: $a = 7,90$ mm, $A = 37,50$ mm, $E = 46,00$ mm, $h = 12,00$ mm, $e_1 = 12,00$ mm, $e_1 = 12,00$ mm, $e_1 = 12,00$ mm, $e_2 = 12,00$ mm, $e_3 = 12,00$ mm, $e_4 = 12,00$ mm, $e_5 = 12,00$ mm, $e_7 = 12,00$ mm, $e_8 = $	
	3,00 mm e e ₂ = 8,85 mm	p. 40
4.2	Valores de $\frac{T}{1}$, , m, $\frac{T}{1}$ e G() medidos nas amostras de solo	p. 44

4.3	Atividade total do ²¹⁰ Pb, em Bq, estimada pela média das atividades calcula-	
	dos pelo método de correção da auto-absorção com os padrões secundários	
	de ²¹⁰ Pb nas matrizes de SiO ₂ e de CaCO ₂	p. 46
5.1	Atividades individuais do ²¹⁴ Pb, do ²¹⁴ Bi, e atividades totais e específicas do	
	²²⁶ Ra e do ²³⁸ U nos três perfís de solo	p. 48
5.2	Atividades totais e específicas do $^{210}{\rm Pb}$ observados nas amostras de solo	p. 49
5.3	Atividades individuais do ²²⁸ Ac e do ²⁰⁸ TI, atividades totais do ²²⁸ Ra e do	
	²²⁸ Th e do ²³² Th nos perfís de solo	p. 55
5.4	Atividades totais, específicas e concentrações do ⁴⁰ K nas amostras de solo.	p. 56
A.1	Coeficientes da equações A.23 e A.24	p. 72
B.1	Energia dos fótons espalhados por efeito Compton como função do ângulo	
	de espalhamento, admitindo um feixe de fótons incidente com 46,5 keV de	
	energia	p. 77

1 Introdução

O conhecimento da distribuição e dinâmica dos diversos radionuclídeos naturais e de alguns radionuclídeos artificiais nos diferentes tipos de solo representa um aspecto importante do estudo da radioatividade ambiental.

Nas últimas três décadas houve um aumento considerável no interesse sobre o estudo de processos de formação e evolução de solos e de processos de erosão, transporte e deposição e de sedimentos recentes. Esse interesse reflete, pelo menos em parte, a preocupação cada vez maior com problemas relacionados com a degradação do meio ambiente, com o aumento da perda da camada de solo e com a contaminação da água e do solo.

Estudos de processos pedogênicos e sedimentares recentes requerem uma cronologia confiável dos diferentes enventos. Com a exceção de situações extremamente
favoráveis e pouco usuais, o estabelecimento de uma cronologia para esses processos
baseia-se na determinação das atividades de radionuclídeos naturais de meia-vida
curta e de radionuclídeos artificiais liberados na atmosfera em ensaios nucleares.

Um segundo aspecto, onde o conhecimento da radioatividade dos solos tem um papel relevante, diz respeito à contínua exposição, da população em geral, à radiação natural de baixa intensidade. Nesse sentido, o comportamento do rádio, em particular do isótopo ²²⁶Ra e do seu produto de decaimento, o ²²²Rn, desperta um interesse especial, uma vez que são responsáveis por cerca de 50% da dose de exposição humana à radiação (NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION, 1987 apud GREEMAN et al., 1999). O conhecimento do comportamento do rádio nos solos também é impor-

1 Introdução 16

tante, uma vez que depois do ⁴⁰K, esse isótopo representa a maior fonte de radiação nos alimentos (LINSALATA, 1994 apud GREEMAN et al., 1999).

O presente trabalho consiste em uma aplicação da técnica de espectrometriano estudo da radioatividade de amostras de solo. Em particular, utilizou-se a técnica da
espectrometria- de alta resolução na determinação da atividade do ²¹⁰Pb. Para essa
aplicação foi adaptado um método de correção dos efeitos de absorção da radiaçãocom 46,5 keV pela matriz de solo.

A dissertação foi organizada em quatro capítulos, mais introdução, conclusão e dois apêndices. O capítulo 2 apresenta um descrição suscinta do comportamento do urânio, do tório, do rádio e do potássio no solo, além da movimentação no solo e subsequente escape do gás ²²²Rn para a atmosfera e da distribuição do ²¹⁰Pb no solo e seu comportamento quando presente na atmosfera. O capítulo 3 descreve, em detalhe, o processo de coleta e preparação das amostras, e a técnica utlizada para obtenção das medidas de atividade dos radionuclídeos, além dos respectivos limites de detecção. O capítulo 4 é dedicado ao desenvolvimento do método de correção da auto-absorção da radiação- com 46,5 keV de energia emitida pelo ²¹⁰Pb, deduzido em detalhe nos apêndices A e B. O capítulo 5 reúne os resultados obtidos e os discute.

2 Informações geológicas dos radionuclídeos da série do urânio, da série do tório e do potássio

2.1 Distribuição do urânio, rádio e tório no solo

A transformação de rochas com teores normais e bem distribuídos nos radionuclídeos urânio e tório pode resultar em materiais de alteração com diferentes distribuições e concentrações desses elementos.

Em geral os solos apresentam valores de radioatividade inferiores aos das rochas, porque, uma vez presente nos solos os radionuclídeos podem ser absorvidos por plantas, ou ter sua concentração lentamente reduzida por processos de lixiviação (GREEMAN; ROSE, 1996; GREEMAN et al., 1999).

As principais anomalias de urânio e de tório são originadas a partir de minerais resistentes contendo urânio e tório, compostos insolúveis de tório, e urânio e tório fixados por oxihidróxidos de ferro, alumínio, manganês e argilas, tais anomalias estão situadas no topo do horizonte B latossólico e as de menor intensidade, mas com maior proporção relativa de urânio livre, fixado principalmente por adsorção, distribuem-se pelo corpo deste horizonte (LANGMUIR, 1978; LANGMUIR; HERMAN, 1980). A retenção de urânio e tório nos perfís de alteração deve-se à estabilidade das fases acessórias, ao urânio e ao tório adsorvidos aos produtos do intemperismo, óxidos e argilas, assim como a insolubilidade dos compostos de tório, em níveis mais profun-

dos é maior a proporção de urânio livre, adsorvido em argilas e colóides de ferro e alumínio (REBELO; BITTENCOUT; MANTOVANI, 2002). Mesmo materiais intensamente lixiviados mostram uma relativa elevação nos valores de concentração do urânio e do tório, pela acumulação de minerais resistentes e pela associação com as fases óxido, argilosa e carbonosa, principalmente no topo dos horizontes A e B destes solos (REBELO; BITTENCOUT; MANTOVANI, 2002).

A presença de rádio no solo deve-se principalmente aos minerais de urânio e tório presente nos solos e rochas próximas, soluções de rádio e de seus predecessores migrando para camadas profundas do solo, e precipitação do rádio e seus pais que estejam presente na atmosfera (JAWOROWSKI, 1990). Durante o intemperismo e migração da rocha para o solo o rádio pode ser mobilizado em fase particulada, transportado e depositado como *loess*, sedimentos e solos terciários, entretanto, parte do rádio pode se solubilizar em água e em seguida ser depositado no solo através de ação química ou biológica (IYENGAR, 1990). A alteração também mobiliza o urânio e o rádio para fora da rocha, eles são posteriormente redepositados por adsorção em óxidos ferrosos, matéria orgânica e minerais secundários, por esse motivo espera-se um enriquecimento de urânio e rádio no horizonte B (EDSFELDT, 2001). A concentração do ²²⁶Ra no solo varia entre 3,7 a 125,8 Bq/kg em áreas normais, os altos valores de concentração são característicos de solos desérticos (70,3-125,8 Bq/kg), os baixos valores correspondem a solos calcáreos, enquanto que os valores intermediários variam com a composição dos solo (IYENGAR, 1990).

No solo as concentrações do ²²⁶Ra são, geralmente, diferentes das concentrações do ²³⁸U, esta evidência é um reflexo de suas diferentes mobilidades, o que praticamente não existe quando se trata das concentrações do ²³²Th e ²²⁸Ra, a heterogeneidade do solo é o fator que exerce uma maior influência sobre a distribuição irregular do rádio no solo (IYENGAR, 1990; JAWOROWSKI, 1990; GREEMAN et al., 1999).

2.2 Escape do ²²²Rn no solo

O radônio é um membro internediário, gasoso, presente nas três séries radioativas naturais e por ser um produto de decaimento do rádio, é produzido em qualquer meio que o contenha. Na natureza ocorre em três diferentes isótopos, o 219 Rn ($t_{1=2} = 3,96$ segundos), o 220 Rn ($t_{1=2} = 55,6$ segundos), também conhecido como torônio, e o 222 Rn ($t_{1=2} = 3,82$ dias) (MOLINARI; SNODGRASS, 1990; IVANOVICH; HARMON, 1992).

O radônio, por ser um gás inerte, é capaz de se deslocar, por grandes distâncias, dos locais onde é gerado durante sua curta existência. Seu escape ocorre na forma de um íon de recuo devido à energia recebida durante o decaimento- do núcleo pai com consequente difusão do átomo neutro através dos poros internos dos gãos minerais e posterior difusão e transporte intergranular na matriz sólida permeável (TANNER, 1964, 1980). Os átomos de radônio migram para a água subterrânea ou para as camadas superiores do solo. O radônio se concentra nas camadas superiores do solo, de onde eventualmente escapam (TANNER, 1964, 1980).

A distribuição irregular do rádio na matriz sólida, que provávelmente é uma consequência dos sucesivos recuos- que o geraram a partir do ²³⁸U, facilita o escape do radônio imediatamente após o seu decaimento (KRISHNASWAMI et al., 1982; SEMKOW, 1990; SEMKOW; PAREK, 1990). No processo de decaimento-, o núcleo residual produz ao longo da sua trajetória uma intensa ionização que desorganiza localmente a rede cristalina do sólido. Os defeitos induzidos pela radiação tornam a rede cristalina mais sucestível à dissolução quando em contato com água de chuva, de solo ou água subterrânea resultando em uma lixiviação preferencial das diferentes espécies atômicas nele contida (KIGOSHI, 1971; FLEISCHER, 1982, 1988; SUN; SEMKOW, 1997).

Os estudos sobre a emanação, exalação e transporte de radônio mostram que sua a concentração no solo varia com o tempo, e que estas variações estão frequentemente associadas não só com a natureza física e química do solo e do ambiente, como porosidade e permeabilidade, tamanho e composição do grão, distribuição do

rádio, erosão, compactação e formação do horizonte de solo (MEGUMI; MAMURO, 1974; SEMKOW; PAREK, 1990; GREEMAN; ROSE; JESTER, 1990; WASHINGTON; ROSE, 1992; GREEMAN; ROSE, 1996), mas também com os gradientes de pressão e temperatura, vento e umidade (WASHINGTON; ROSE, 1990, 1992; NAZAROFF, 1992; EDSFELDT, 2001). Greeman e Rose (1996) estimaram coeficientes de emanação em solos variando entre 0,15 a 0,25 para o radônio e de 0,10 a 0,20 para o torônio (220Rn).

A radioatividade natural no ar, altitude entre 0 e 10 Km, é devido principalmente à emanação de elementos radioativos gasosos (isótopos de radônio: ²¹⁹Rn (t₁₌₂ = 4 segundos), ²²⁰Rn (t₁₌₂ = 55 segundos) e ²²²Rn (t₁₌₂ = 3; 8 dias)), principalmente radônio e torônio, e seus produtos de decaimento (MOLINARI; SNODGRASS, 1990; IVANOVICH; HARMON, 1992). Os diferentes tempos de meia-vida dos isótopos de radônio proporcionam uma diferença entre suas concentrações e de seus descendentes na atmosfera, resultando numa maior concentração dos descendentes do ²²²Rn. Consideráveis variações do nível de radioatividade na atmosfera são observados com o tempo, em geral variações de periodicidade sazonal e diurna são regulares abaixo da estratosfera, estas variações regulares estão sujeitas à flutuações aleatórias causadas por muitos fatores (pressão, temperatura, velocidade e direção do vento, precipitação, etc) (JUNGE, 1963; TUREKIAN; NOZAKI; BENNINGER, 1977).

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

2.3 Distribuição do ²¹⁰Pb no solo e na atmosfera

O ²¹⁰Pb é um elemento radioativo largamente utilizado em estudo ambientais (IVANOVICH; HARMON, 1992), é enriquecido na superfície do solo, e decresce em concentração à medida que a profundidade aumenta, em solos que permaneceram nãoperturbados, por um século ou mais, a atividade do ²¹⁰Pb pode variar bastante com a profundidade (MOORE; POET, 1976). A concentração do ²¹⁰Pb no solo é devido à difusão do gás ²²²Rn, à sua adsorção nas partículas de solo e ao decaimento do ²²²Rn na atmosfera seguido por processos de precipitação ou deposição dos seus filhos da atmosfera para o solo (MOORE; POET, 1976; TUREKIAN; NOZAKI; BENNINGER, 1977; IMOBODEN; STILLER, 1982).

Descendentes radioativos do ²²²Rn atmosférico são continuamente retirados da atmosfera por partículas aerosóis, esta remoção mantém o deseguilíbrio radioativo entre os filhos do ²²²Rn na troposfera inferior, e podem ser usados como ferramenta para determinar o tempo de residência destes aerosóis (POET; MOORE; MARTELL, 1972; MOORE; POET; MARTELL, 1973; RANGARAJAN, 1992). Devido à mudança das condições metereológicas a taxa de remoção da atmosfera varia nas diferentes localidades continentais, oceânicas e a altas altitudes da atmosfera (WARNECK, 2000; JUNGE, 1963). Os dados publicados por Junge (1963), Martell e Moore (1974), Turekian, Nozaki e Benninger (1977) admitem um tempo de residência variando de 4 - 72 dias, porém subdividido em dois grupos com valores médios de 6 e 35 dias. Junge (1963) verificou que os altos valores, 35 dias, são apropriados para o tempo de residência de aerosóis na troposfera, enquanto que os baixos valores, 6 dias, são aplicáveis somente às camadas da atmosfera mais próximas da superfície da Terra. Martell e Moore (1974) descreveram estes altos valores como uma contribuição de aerosóis estratosféricos, enquanto que os baixos valores representam o tempo de residência real da troposfera, que é essencialmente independente da altitude.

Assumindo uma distribuição uniforme do rádio com a profundidade ($A_{^{226}Ra} = 4,4$

dpm/g) Moore e Poet (1976) obteveram um valor de 3,52 dpm/g de ²¹⁰Pb de solo, e subtraindo este valor do total existente de ²¹⁰Pb nas várias profundidades, verificaram que a principal contribuição do ²¹⁰Pb atmosférico localiza-se nos 20 cm superiores da camada de solo. Nesta profundidade, considerando apenas a contribuição do ²¹⁰Pb depositado, estimaram um valor de 1,6 dpm cm⁻² ano⁻¹ para o fluxo atmosférico do ²¹⁰Pb, valor muito próximo do encontrado por Fisenne (apud MOORE; POET, 1976), 1,2 dpm cm⁻² ano⁻¹, e por Benninger, Lewis e Turekian (apud MOORE; POET, 1976), 0,8 - 1,2 dpm cm⁻² ano⁻¹, ambos usando uma técnica similar. As altas taxas de precipitação devem encontradas próximas ao equador, onde o tempo de residência atmosférico pode ser curto e uniforme (POET; MOORE; MARTELL, 1972; MOORE; POET; MARTELL, 1973).

A taxa de precipitação do ²¹⁰Pb pode ser determinada diretamente, utilizando-se coletores especialmente projetados, ou indiretamente, medindo-se a distribuição do ²¹⁰Pb no solo (POET; MOORE; MARTELL, 1972). A distribuição do ²¹⁰Pb no solo está associada a movimentação do ²²²Rn, que se conhecida pode ser usada para estimar a atividade do ²¹⁰Pb proveniente da atmosfera (IMOBODEN; STILLER, 1982).

2.4 Ocorrência do potássio em solos

Em solos formados sobre rocha granítica a taxa de alteração dos minerais que contém o potássio, como o feldspato potássico, e o fluxo de água podem controlar a quantidade de potássio presente nestes solos. Após sua entrada na solução do solo, o K⁺ também é usado na formação de minerais potássicos do solo, adsorvido sobre argila ou removido por migração fluida (HEIER; BILLINGS, 1978). Nos solos o potássio está presente nos fragmentos de minerais potássicos, e algumas vezes apresenta enriquecimento devido ao comportamento do K⁺ no ciclo biológico, e adsorção em lamas e argilas (COCCO; FONFANI; ZANAZZI, 1978).

3 Medidas de atividade por espectrometria de raios-γ

A atividade do ⁴⁰K e dos radionuclídeos pertencentes às séries radioativas do urânio (²³⁸U) e do tório (²³²Th) foi determinada por espectrometria gama, seguindo a metodologia descrita por Ribeiro et al. (2001).

A atividade do isótopo ²²⁶Ra foi estimada medindo-se a atividade dos seus produtos de decaimento de meia-vida curta, o ²¹⁴Pb e o ²¹⁴Bi, em uma condição que, se espera, garanta a existência de equilíbrio radioativo secular entre esses nuclídeos. No caso do ²¹⁴Pb foram utilizados os picos de absorção total com 295,4 keV e com 351,0 keV de energia. No caso do ²¹⁴Bi foram utilizados os picos de absorção total com 609,0 keV e com 1764,0 keV de energia.

A atividade do isótopo ²³⁸U foi estimada indiretamente através da atividade do isótopo ²³⁵U, que inicia a série do actínio, medida utilizando-se a seu pico de absorção total de 185,9 keV. A atividade do ²³⁸U é estimada assumindo uma razão isotópica constante para o urânio natural de 0,7205% de núcleos de ²³⁵U é de 99,2738% de núcleos de ²³⁸U. O pico de absorção total com 185,9 keV do ²³⁵U superpõe-se ao pico de absorção total com 186,2 keV do ²²⁶Ra. O efeito dessa superposição pode ser corrigido quando a atividade do ²²⁶Ra pode ser estimada com boa precisão a partir das atividades dos seus produtos de decaimento de meia-vida curta (RIBEIRO et al., 2001).

A atividade do ²¹⁰Pb foi estimada diretamente através do seu pico de absorção

total com 46,5 keV de energia.

O isótopo ²²⁸Ra não emite radiação- . A sua atividade foi estimada medindo-se a atividade- do seu produto de decaimento, o ²²⁸Ac, utilizando-se os seus picos de absorção total com 911,2 keV e com 968,9 keV de energia. A atividade do ²²⁸Th foi estimada medindo-se a atividade dos seus descendentes de meia-vida curta, o ²⁰⁸Tl, usando os seus picos de absorção total com 583,2 keV e com 860,6 keV, em uma condição que garanta a existência de equilíbrio radioativo secular entre eles.

A atividade do ⁴⁰K foi estimada diretamente através do seu pico de absorção total com 1460,4 keV de energia.

O espectrômetro- utilizado é munido de um detector coaxial de germânio hiperpuro, com um volume de 253 cm³ e com uma eficiência relativa nominal de 70%. A sua resolução para o pico de absorção total do ⁶⁰Co com 1332,9 keV é de 2,153, com um desvio padrão de 0,075, determinada apartir de 51 estimativas individuais.

3.1 Local de coleta das amostras

As amostras foram coletadas no terreno do Instituto de Botânica da Secretaria de Meio Ambiente do Estado de São Paulo, que está localizado no Parque Estadual das Fontes do Ipiranga, no bairro da Água Funda na cidade de São Paulo.

No final do século XIX, o terreno que hoje corresponde ao Parque Estadual das Fontes do Ipiranga fazia parte de uma extensa área de vegetação nativa, esparçamente ocupada por pequenas prorpiedades rurais. Em 1893, o governo do Estado de São Paulo, com o objetivo de recuperar a vegetação nativa e proteger os mananciais locais, declarou a área como sendo de utilidade pública e estabeleceu o "Parque do Estado", com uma área aproximada de 6.700.000 metros quadrados. Em 1917, toda a área do Parque passou para a propriedade do Estado. O Jardim Botânico, que hoje faz parte do Instituto de Botânica foi formalmente estabelecido em 1938.

O local de onde as amostras foram retiradas está localizada em uma área de mata preservada no Jardim Botânico. A cobertura vegetal é densa e não tem sido significantemente perturbada, pelo menos, desde o estabelecimento da instituição. Em consequência, as camadas superiores do solo local também não foram diretamente perturbadas desde 1938.

A região do Parque Estadual das Fontes do Ipiranga e, em particular, do Jardim Botânico foi exposta a uma intensa poluição atmosférica associada à atividade industrial nas suas vizinhanças durante a segunda metade do século XX, até a, aproximadamente, dez anos atrás (SECRETARIA DE MEIO AMBIENTE DO ESTADO DE SÃO PAULO, 2006).

3.2 Coleta e descrição das amostras

As amostras de solo foram coletadas em um único local em três furos feitos com um trado manual. Os três furos são muito próximos uns dos outros e definem os vértices de um arranjo triangular, figura 3.1, aproximadamente equilátero, com um metro de lado. A profundidade total dos furos é de 2,10 metros. No centro do arranjo, um quarto furo foi feito para retirar amostras destinadas à descrição do solo.

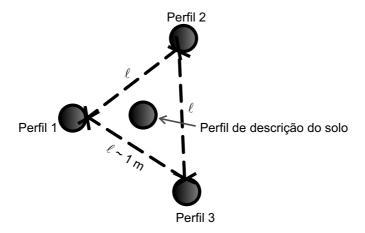
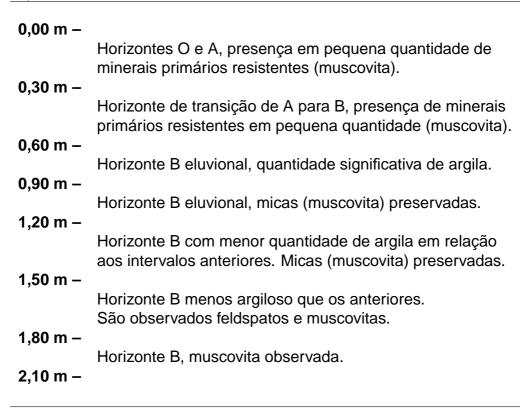


Figura 3.1: Distribuição horizontal dos perfís de amostragem do solo retirado no Instituto de Botânica.

Em cada furo, o material retirado a cada intervalo de profundidade de 0,30 m

Tabela 3.1: Descrição da camada de solo amostrada no terreno do Jardim Botânico de São Paulo, Parque Estadual das Fontes do Ipiranga (baseado na descrição feita pelo Professor Joel B. Sígolo do Instituto de Geociências da USP).



compôs uma amostra. Foram retiradas, no total, vinte e uma amostras para análise da radioatividade natural e sete amostras para descrição do solo. A massa das amostras variaram entre 1,10 kg e 1,50 kg.

Todo o intervalo perfurado corresponde à camada de *solum*. Nenhum dos furos atingiu o nível de saprólito. A tabela 3.1 apresenta a descrição das camadas do solo amostrado. Trata-se de um latossolo desenvolvido sobre uma rocha quartzo-feldspática (granitóide). A maior parte do intervalo de profundidades amostrado, entre 0,60 e 2,10 m, corresponde ao horizonte B. Entre 0,30 e 0,60 m observa-se a transição de um horizonte A para um horizonte B. A camada mais superficial de 0,30 m de espessura corresponde aos horizontes A e O.

3.3 Preparação das amostras

No laboratório, as amostras foram secas em uma estufa a aproximadamente 50°C por 72 horas. As amostras já secas foram fragmentadas à mão, quarteadas e uma alíquota com massa de aproximadamente 0,5 Kg foi separada e moída em um moinho de ágata até que nenhum res´

3.4 Padrões de atividade 28

3.4 Padrões de atividade

As atividades dos diversos radionuclídeos contidos nas amostras de solo foram medidas comparando-se as áreas dos picos de absorção total observados com as correspondentes áreas observadas em padrões secundários de radioatividade preparados em laboratório.

Para as medidas de atividade dos radionuclídeos da série do ²³⁸U foi utilizado o padrão secundário, LGTSI05, preparado diluindo-se em quartzo moído o padrão CRM-38 (RIBEIRO et al., 2001). Esse padrão, fornecido pelo Laboratório Nacional New Brunswick do Departamento de Energia dos Estados Unidos, é uma pechblenda contendo 3,90% de U₃O₈, onde o ²³⁸U está em equilíbrio radioativo secular com o ²²⁶Ra.

Para as medidas de atividade dos radionuclídeos da série do ²³²Th foi utilizado o padrão secundário, LTGSI06, diluíndo-se em quartzo moído o padrão NBL79A, também do Laboratório Nacional New Brunswick. A concentração de tório nesse padrão é de 1%. O material contém também 0,04% urânio natural.

Os dois padrões estão encerrados em caixas idênticas às utilizadas para armazenar as amostras de solo. A tabela 3.4 lista as características desses dois padrões.

A comparação direta das áreas dos picos de absorção total observados nas amostras, com as áreas dos picos correspondentes observados nos padrões, requer que a amostra e os padrões tenham coeficientes de atenuação da radiação- muito parecidos, ou iguais.

O coeficiente de atenuação da radiação- é função tanto da energia da radiação, quanto da densidade e da composição do material. A tabela 3.3 foi construída com dados do coeficiente de atenuação para vários materiais, extraídos de Kogan, Nazarov e Fridman (1971) e de Debetin e Helmer (1988). Os valores apresentados nessa tabela mostram que, com excessão da água, os coeficientes de absorção variam pouco para energias superiores a 200 keV. Em particular, os coeficientes de atenuação na sílica e

3.4 Padrões de atividade 29

no material geológico são bastante semelhantes.

No caso da radiação gama emitida pelo ²¹⁰Pb (46,7 keV) a diferença entre os coeficientes de atenuação da sílica e do material geológico é significativa.

Para a determinação da atividade do ²¹⁰Pb contido nas amostras de solo foram preparados padrões secundários de atividade do ²¹⁰Pb em duas matrizes estéreis com coeficientes de atenuação linear diferente da matriz de solo. Foram escolhidas as matrizes de quartzo moído (SiO₂) e a matriz de carbonato de cálcio (CaCO₃) para preparação destes padrões secundários de atividade. O procedimento para se determinar a atividade do ²¹⁰Pb nas amostras de solo a partir destes padrões secundários é detalhado no capítulo 4.

A preparação dos padrões secundários primeiramente consistiu em adicionar alíquotas de um padrão líquido secundário de 210 Pb com atividade específica de (76,59 \pm 0,74) Bq/g nas matrizes de CaCO₃ e de SiO₂. Na matriz de SiO₂ com massa de (528,190 \pm 0,007) g foi adicionada uma alíquota de (1,0293 \pm 0,0001) g do padrão líquido secundário de 210 Pb e na matriz de CaCO₃, com uma massa de (529,955 \pm 0,007) g, foi adicionado uma alíquota com (1,0349 \pm 0,0001) g de massa.

O padrão líquido secundário foi obtido da diluição do padrão 58L97 fornecido pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria da Comissão Nacional de Energia Nuclear. A diluição foi realizada no laboratório do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares da CNEN, em São Paulo.

Os conjuntos, em seguida, foram deixados secar espontâneamente e mecânicamente homogeneizados por um período de aproximadamente 3 horas. A maior parte das massas totais dos conjuntos de CaCO₃ e SiO₂, contendo o 210 Pb, foi acondicionada em recipientes de poliestireno rígido. A massa do padrão de 210 Pb em SiO₂ é de (464,355 \pm 0,005) g e a sua atividade total é de (69,30 \pm 0,67) Bq. A massa do padrão de 210 Pb em CaCO₃ é de (440,355 \pm 0,005) g e a sua atividade total é de (65,86 \pm 0,64) Bq. A tabela 3.4 resume as principais características dos padrões.

Tabela 3.3: Coeficientes de atenuação da radiação- (=massa), expressos em cm²=g, para diferentes energias e diferentes materiais.

Energia	Material geológico ^(a)	Ar ^(b)	Concreto (b)	SiO _(d)	Água ^(b)
(keV)	$ ho \cong 1,7\mathrm{g/cm^3}$	$ ho \cong$ 1, 2923 · 10 ⁻³ g/cm ³	$\rho \cong 1, 5 - 2, 4\mathrm{g/cm^3}$	$\rho \cong 1, 5 - 1, 6 \mathrm{g/cm^3}$	$\rho = 1 \mathrm{g/cm^3}$
20	0,200	0,2073	0,3918	0,3165	0,2262
100	0,149	0,1541	0,1781	0,1682	0,1707
200	0,1205	0,1234	0,1270	0,1255	0,1370
200	0,0877	0,08712	0,08767	0,08738	0,09687
1000	0,0637	0,06359	0,06381	0,06366	0,07070
2000	0,0444	0,04447	0,04482	0,04468	0,04940

(a) Solos e rochas sem especificação, extraído de Kogan, Nazarov e Fridman (1971). (b) Extraído de Debetin e Helmer (1988).

Padão secundário	Certificado do padrão primário	Matriz Matriz	Massa (g)	Atividade total (Bq)
LTGSI 05 (²³⁸ U)	NBL # 3B	SiO ₂	$495,650 \pm 0,005$	60.87 ± 0.29
LTGSI 06 (²³² Th)	NBL # 79A	SiO_2	$503,545 \pm 0,005$	$20,65 \pm 0,13$
LTGK 02 (⁴⁰ K)	$K_2Cr_2O_7$ P. A.	K ₂ Cr ₂ O ₇ P. A.	$466,824 \pm 0,005$	3943 ± 24
padrão de ²¹⁰ Pb em sílica	58L 97 IRD	SiO_2	$464,355 \pm 0,005$	$69,30 \pm 0,67$
padrão de ²¹⁰ Pb em carbonato	58L 97 IRD	$CaCO_3$	$440,355 \pm 0,005$	$65,86 \pm 0,64$
Branco SiO ₂		SiO ₂	$460,755 \pm 0,005$	
Branco CaCO ₃		$CaCO_3$	$421,790 \pm 0,005$	

3.5 Cálculo da atividade de elementos γ -emissores em amostras ambientais

A atividade de todos os nuclídeos que emitem radiação- com uma energia característica pode ser relacionada com a área do pico de absorção total, formado nessa energia, por (DEBETIN; HELMER, 1988):

$$P = \sum_{k=1}^{n} \cdot A_k \cdot p_k(E) \cdot "(E) \cdot e^{-kt} \cdot T$$
 (3.1)

onde P é a área do pico de absorção total, A_k é a atividade do k-ésimo nuclídeo que contribui para a formação do pico de absorção total, $p_k(E)$ é a probabilidade de emissão de um fóton com energia característica E do k-ésimo nuclídeo, "(E) é a eficiência absoluta de detecção dependente da energia do fóton da atenuação da radiação- na matriz da amostra e da geometria de detecção, k é a constante de decaimento do k-ésimo nuclídeo que contribui para a formação do pico de absorção total, k o tempo de decaimento da amostra e T é o tempo de duração da contagem.

Caso o pico de absorção total seja formado pelo decaimento de um único nuclídeo e o tempo de decaimento da amostra, t, seja muito menor que o seu tempo de meia-vida a soma das contribuições de todos os nuclídeos, equação 3.1, reduz-se a contribuição de apenas um isótopo, k = 1, que relaciona sua atividade com o seu respectivo pico de absorção total e tempo de contagem,

$$P = A \cdot p(E) \cdot "(E) \cdot T \tag{3.2}$$

As medidas -espectrométricas de uma série radioativa natural nem sempre pode ser aplicada a todos os radionuclídeos dessas séries cujas atividades sejam desejadas, por não emitirem um fóton durante seu decaimento. Nesse caso, a atividade destes nuclídeos podem ser obtidas através de um, ou mais, produtos de seu decaimento, desde que o produto de decaimento seja um emissor- com energia men-

surável e a situação de equilíbrio radioativo secular entre os radionuclídeos, pai e filho tenha sido alcançado, através da equação 3.2, que permanece válida se a geometria de detecção e a atenuação da radiação- na amostra e no padrão forem as mesmas.

Conhecida a atividade do padrão secundário e as áreas de seus picos de absorção total, correspondentes à um nuclídeo em particular com um energia de emissão E, a atividade deste pode ser estimada através da relação 3.2 modificada para acomodar o pico de absorção, a atividade do padrão e da amostra, e seus respectivos tempos de contagem:

$$\frac{P_a}{P_p} = \frac{A_a \cdot T_a}{A_p \cdot T_p} \tag{3.3}$$

onde os índices a e p referem-se à amostra e ao padrão, respectivamente.

Um radionuclídeo que possua várias linhas de emissão- com energias diferentes, como, por exemplo, o 214 Pb, permite a obtenção de um conjunto de estimativas independentes da sua atividade. Admitindo, em primeira aproximação, que cada uma dessas estimativas possa ser considerada como um valor extraído de uma distribuição normal, a estimativa de maior probabilidade para a atividade desse radionuclídeo é dada pela média (\bar{x}) dos valores individuais (x_i) ponderada pelo inverso dessas variâncias (x_i) :

$$\bar{x} = \frac{\sum_{i=1}^{n} \left(\frac{x_i}{\frac{2}{i}}\right)}{\sum_{i=1}^{n} \left(\frac{1}{\frac{2}{i}}\right)}$$
(3.4)

o desvio padrão associado a essa estimativa é dado por (VUOLO, 1996):

$$^{2} = \frac{1}{\sum_{i=1}^{n} \frac{1}{2^{i}}} \tag{3.5}$$

Para se verificar se o valor médio fornecido pela equação 3.4 é representativo dos valores individuais, aplica-se o teste do ² tal como descrito, por exemplo, em Vuolo (1996). Nesse caso, o valor observado da variável qui-quadrado (²_{obs}) é dado por:

$$_{\text{obs}}^{2} = \sum_{i=1}^{n} \left(\frac{x_{i} - \overline{x}}{i} \right)^{2}$$
 (3.6)

Em todas as aplicações do teste ² adotou-se o valor de 0,05 para o nível de significância ().

O mesmo critério pode ser adotado para se estimar a atividade de um radionuclídeo, como, por exemplo, o ²²⁶Ra, medindo-se as atividades de seus produtos de decaimento, neste caso o ²¹⁴Pb e o ²¹⁴Bi. Nesse caso, no entanto, é necessário que os radionuclídeos estejam em equilíbrio radioativo secular.

A atividade do 238 U na amostra, $A(^{238}U)_a$, foi calculada através da relação (RIBEIRO et al., 2001):

$$A(^{238}U)_a = (2;332 \pm 0;026) \cdot \frac{P_a T_p}{P_p T_a} \cdot A(^{226}Ra)_p - (1;332 \pm 0;026) \cdot A(^{226}Ra)_a$$
 (3.7)

onde $A(^{226}Ra)_a$ e $A(^{226}Ra)_p$, T_a e T_p são, respectivamente, as áreas do pico de absorção total formado pela superposição dos decaimentos do ^{235}U (185,7 keV) e do ^{226}Ra e os respectivos tempos de aquisição dos espectros das amostras e dos padrões.

3.6 Radiação de fundo, níveis críticos e limites de detecção qualitativa

A tabela 3.5 apresenta as áreas dos diversos picos de absorção total dos radionuclídeos, escolhidos para a determinação das concentrações de potássio, urânio e tório, e obtidos durante a observação da radiação de fundo feita com o padrão estéril de quartzo moído (SiO_2). A tabela 3.5 apresenta também os níveis críticos (N_C) e os limites de detecção qualitativa (L_D), tais como definidos por Currie (1968), assumindose erros máximos do tipo I e do tipo II (para N_C e L_D , respectivamente) de 0,05.

Tabela 3.5: Contagem da radiação de fundo observadas em um período de 48 horas com o padrão estéril LTGSI05 (quartzo moído), níveis críticos e limites de detecção qualitativa correspondentes aos diversos radionuclídeos utilizados.

Nuclídeo	Energia	Contagem	Nível crítico	Limite de
	(keV)	de fundo*	(N _C)*	detecção (L _D)*
²¹⁴ Pb	295,1	2384±79	183	369
. 5	351,9	4071±93	216	435
²¹⁴ Bi	609,3	3119±75	174	351
	1764,5	846±39	114	185
²²⁸ Ac	911,2	2123±62	144	291
	969	1210±87	202	407
²⁰⁸ TI	583	2866±77	179	361
	860,6	355±43	100	203
⁴⁰ K	1460,8	12443±121	281	565

^{*} número de contagens por um período de 48 horas.

A tabela 3.6 apresenta as áreas do pico de absorção total do ²¹⁰Pb com 46,5 keV observados nos padrões estéreis de quartzo moído (LTGSIPb) de carbonato de cálcio (LGTCARPb). A tabela apresenta também os níveis críticos e os limites de detecção qualitativa para cada um dos padrões secundários.

Tabela 3.6: Contagem da radiação de fundo, em um período de 48 horas, na região do pico de absorção total do ²¹⁰Pb com 47,5 keV de energia, nível crítico e limite de detecção qualitativa nos padrões LGTSIPb e LGTCARPb.

Padrão estéril	Matriz	Contagem de fundo*	Nível crítico (N _C)*	Limite de detecção (L _D)*
LGTSIPb	SiO ₂	1034±77	179	361
LGTCARPb	CaCO ₃	1018±84	179	395

^{*} número de contagens por um perío de 48 horas.

4 O problema da correção do efeito de auto-absorção da radiação-γ emitida pelo ²¹⁰Pb

A medida da atividade do ²¹⁰Pb por espectrometria- , através da sua linha de emissão com 46,5 keV, exige que se aplique uma correção para compensar o efeito da absorção, pela matriz da amostra, da radiação emitida pelo ²¹⁰Pb disperso nessa matriz. Existe, na literatura, um número considerável de trabalhos que tratam desse problema de auto-absorção.

Inicialmente Cutshall, Larse e Olsen (1983) elaboraram um técnica experimental para corrigir a auto-absorção do ²¹⁰Pb medindo-se a transmissão direta da radiação-de baixa energia em cada amostra. Para aplicar este método torna-se nescessário medir a atividade duas vezes: uma com uma fonte forte de ²¹⁰Pb na presença da amostra e uma outra medida na ausência da amostra, onde o coeficiente de correção da auto-absorção proposto por Cutshall, Larse e Olsen (1983) seria a razão entre a atividade da amostra medida com a fonte de ²¹⁰Pb sobre ela e a medida correspondente à atividade da fonte de ²¹⁰Pb localizada na mesma posição da medida anterior. Baseando-se no trabalho de Cutshall, Larse e Olsen (1983) muitos autores, como Galloway (1991), Appleby, Richardson e Nolan (1992), Bolivar, Garcia-Tenorio e Garcia-Leon (1996), Hussain et al. (1996), Miguel et al. (2002), Vargas et al. (2002), trataram do problema da auto-absorção da radiação gama em amostras ambientais para diversas energia e diferentes geometrias, usando diferentes aproximações teóricas e experimentais.

A seguir é apresentado o método, que foi utilizado neste trabalho, para corrigir o efeito da autro-absorção da radiação- emitida pelo ²¹⁰Pb. O método, que é baseado no trabalho original de Cutshall, Larse e Olsen (1983), leva em consideração as geometrias de detecção utilizados, tanto nas medidas do coeficiente de atenuação linear, quanto nas medidas de atividade das amostras e dos padrões.

4.1 Método de correção da auto-absorção na determinação da atividade do ²¹⁰Pb

4.1.1 A determinação do coeficiente de atenuação linear

A figura 4.1 apresenta um esquema do arranjo experimental utilizado para a medida do coeficiente de atenuação linear das amostras de solo e dos padrões de radioatividade.

A amostra, ou o padrão, encerrada na caixa de poliestireno rígido, é posta sobre o detector de forma que o seu eixo coincida com o eixo do cristal de germânio. A distância entre a amostra e o detector, incluindo as espessuras dos diferentes invólucros é e_2

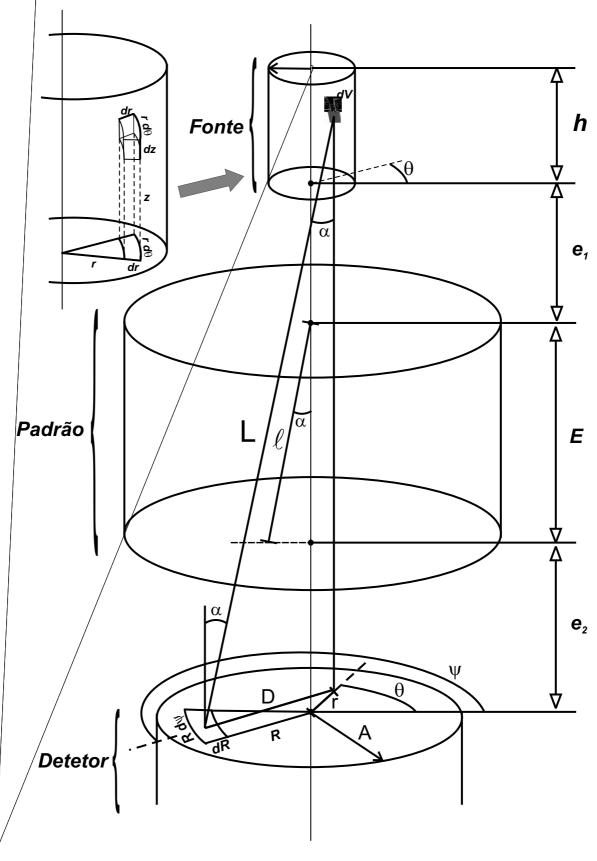


Figura 4.1: Geometria para o ângulo sólido de um fóton incidente sobre a superfície do detector quando emitido por um padrão radioativo secundário localizado sobre a amostra de solo

.

$$I(\) = \frac{C_0}{2\ a^2 h} \cdot \int_{e_4 + F + e_2}^{h + e_1 + E + e_2} \int_0^a \int_0^A \int_0^2 \frac{e^{-\frac{E}{2} \sqrt{\frac{2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos\Delta}{cos\Delta}}} rR}{\left(\frac{2}{2} + r^2 + R^2 - 2rR\cos\Delta\right)^{\frac{3}{2}}} d\Delta dR dr d$$
 (4.1)

onde é o coeficiente de atenuação linear da radiação- na amostra. Se o seu diâmetro for pequeno, quando comparado com as outras dimensões do arranjo, a fonte de radiação- pode ser representada por uma fonte linear de altura *h*. Neste caso, o fluxo de radiação primária que atinge a superfície do detector é

$$I(\) = \frac{C_0}{2h} \ E \cdot \int_{e_1 + E + e_2}^{h + e_1 + E + e_2} \left(\frac{e^{-E}}{E} - \frac{e^{-E\sqrt{\frac{A^2}{2} + 1}}}{E\sqrt{\frac{A^2}{2} + 1}} - E_1(\ E) + E_1\left(\ E\sqrt{\frac{A^2}{2} + 1}\right) \right) d \qquad (4.2)$$

onde,

$$E_1 = \int_{0}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t^2} dt$$

No apêndice A.2.1 são apresentadas fórmulas para o cálculo da função $E_1(x)$ com pequenos erros de aproximação.

Com base na equação 4.2, construiu-se uma extensa tabela dos valores calculados da razão entre a radiação transmitida através da amostra (T) e da radiação incidente sobre a amostra (I), para diferentes valores de , dada por

$$\left(\frac{\mathsf{T}}{\mathsf{I}}\right)_{\mathsf{calculado}} = \frac{\mathsf{I(})}{\mathsf{I(}=0)} \tag{4.3}$$

A figura 4.2 apresenta a variação de $\left(\frac{T}{I}\right)_{calculado}$ como função do coeficiente de atenuação linear.

Para se ter uma idéia da qualidade da aproximação representada pelo modelo de fonte linear, um conjunto menor de valores de $\left(\frac{T}{I}\right)_{calculado}$ foi calculado pelo modelo

de fonte extensa (equação 4.1). A tabela 4.1 compara os resultados obtidos pelos dois modelos até a quarta casa decimal. As integrais contidas nas equações 4.1 e 4.2 foram calculadas usando o método de integração de Gauss-Legendre (PRESS et al., 1986)(apêndice A).

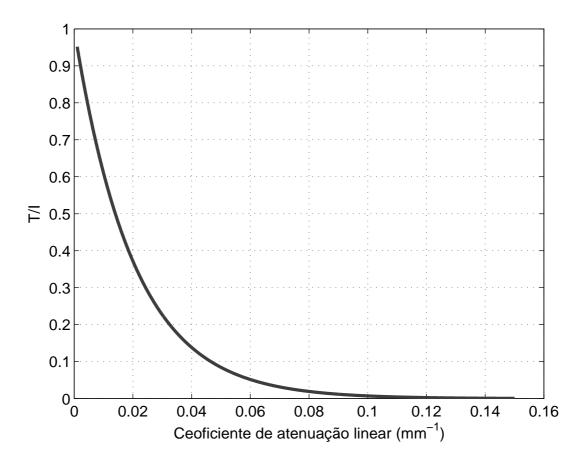


Figura 4.2: Valores da relação $\binom{T}{I}_{\text{calculado}}$, equação 4.3, em função do coeficiente de atenuação linear (), com $e_1=3\,\text{mm},\,e_2=8;85\,\text{mm},\,E=46,00\,\text{mm}$ e h = 12,00 mm.

O procedimento para a determinação do coeficiente de atenuação linear consistiu em acumular, por um período de duas horas, o espectro da fonte de ²¹⁰Pb utilizando o arranjo experimental esquematizado na figura 4.1. Após o período de contagem calcula-se a área do pico de absorção total correspondente à energia do decaimento do ²¹⁰Pb (P₁). O processo é então repetido substituindo a amostra por uma caixa porta-amostras vazia e obtem-se uma área do pico de absorção total (P₂). Em

Tabela 4.1: Comparação entre os valores de $\frac{T}{I}$ obtidos através da equação 4.1 (fonte extensa) e através da equação 4.2 (fonte linear). Os parâmetros da fonte extensa são: a = 7,90 mm, A = 37,50 mm, E = 46,00 mm, h = 12,00 mm, e₁= 3,00 mm e₂= 8,85 mm.

Coeficiente de	T/I	T/I
atenuação linear (μ)	(Fonte linear)	(Fonte extensa)
0,0635	0,0434	0,0432
0,0614	0,0482	0,0480
0,0598	0,0521	0,0519
0,0578	0,0575	0,0573
0,0557	0,0638	0,0635
0,0522	0,0758	0,0755
0,0485	0,0910	0,0906
0,0454	0,1060	0,1056

seguida, acumula-se, também por duas horas, o espectro- da amostra e o espectro- da caixa vazia, obtendo-se as áreas do pico de absorção total P₃ e P₄, respectivamente.

O valor medido da razão T é dado por

$$\left(\frac{\mathsf{T}}{\mathsf{I}}\right)_{\mathsf{medido}} = \frac{\mathsf{P}_1 - \mathsf{P}_3}{\mathsf{P}_2 - \mathsf{P}_4} \tag{4.4}$$

e a incerteza desse valor é obtido propagando-se as incertezas dos valores de P_1 , P_2 , P_3 e P_4 . Com base no valor dado pela equação 4.4, interpola-se, na tabela que deu origem a figura 4.2, o valor de da amostra analisada. A incerteza do valor do coeficiente de atenuação linear é obtida adicionando-se e subtraindo-se do valor médio de $\left(\frac{T}{I}\right)_{medido}$ a sua incerteza e interpolando-se os valores de correspondentes.

4.1.2 A correção do efeito de auto-absorção pela matriz da amostra

A fração dos decaimentos sofridos pelo 210 Pb contido na amostra, ou no padrão, com atividade total C_0 e que atinje a superfície do cristal de germânio do detector na forma de radiação primária (I()), pode ser calculado por (ver apêndice B)

$$G(\) = \frac{I(\)}{C_0} \frac{1}{2 \ B^2 E} \int\limits_0^E \int\limits_0^B \int\limits_0^A \int\limits_0^2 \frac{e^{-\frac{E}{z + e_2}} \sqrt{(z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos\Delta}}{((z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos\Delta)^{\frac{3}{2}}} \ d\Delta \, dR \, dr \, dz \eqno(4.5)$$

onde A e B são respectivamente, o raio do cristal de germânio e o raio interno da caixa porta-amostra, E é a espessura da amostra, e_2 é a distância da amostra ao cristal incluindo a espessura dos diferentes invólucros e é o coeficiente de atenuação linear da amostra para a radiação- com 46,5 keV de energia.

O fator G() dado pela equação 4.5 representa, de forma conjunta, a geometria de detecção e o efeito de auto-absorção na matriz da amostra e corresponde ao fator G descrito na equação 4.6.

Usando a equação 4.5 uma tabela extensa de valores de *G* foi calculada para diferentes valores de . A figura 4.3 representa a variação de G() como função do coeficiente de atenuação linear.

Uma vez obtido o valor de para uma amostra, interpola-se, na tabela que deu origem à figura 4.3, o valor de G() da amostra analisada. A incerteza do valor de G() é obtida seguindo o mesmo procedimento adotado para se estimar a incerteza do coeficiente de atenuação linear.

O valor da atividade total do 210 Pb contido na amostra (A_a) é obtido por comparação com um padrão de radioatividade com atividade total conhecida (A_p). Nesse caso, modifica-se a equação 3.3 para incluir os fatores G_a e G_p , da amostra e do padrão, respectivamente, na forma

$$\frac{P_a}{P_p} = \frac{A_a \cdot G_a \cdot \Delta t_a}{A_p \cdot G_p \cdot \Delta t_p} \tag{4.6}$$

onde Pa e Pa são as áreas líquidas do pico de absorção total com 46,5 keV

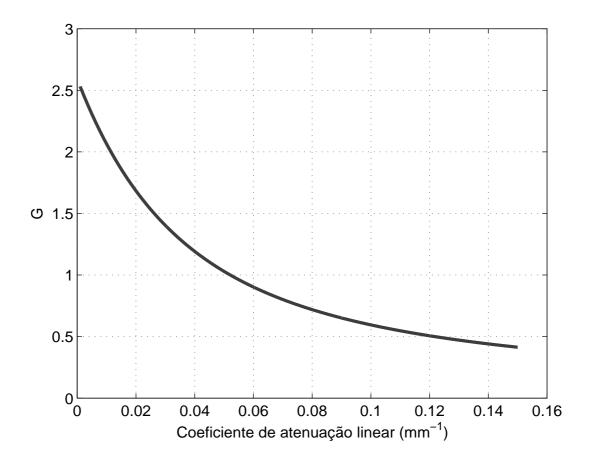


Figura 4.3: Valores do fator de correção da radiação- (G), equação 4.5, em função do coeficiente de atenuação linear (), com A = 37,50 mm, B = 45,00 mm e E = 46,00 mm.

do 210 Pb, obtidas com tempos de integração Δt_a e Δt_p do espectro da amostra e do padrão, respectivamente.

A tabela 4.2 apresenta os valores do coeficiente de atenuação linear (), em mm⁻¹, a razão entre o coeficiente de atenuação linear e a massa ($_{\overline{m}}$), em (g·mm)⁻¹, e o fator adimensional para correção do efeito de auto absorção G para as 21 amostras de solo.

Os coeficientes de atenuação variaram entre $(0;0481\pm0;0006)$ mm⁻¹ e $(0;0569\pm0;0008)$ mm⁻¹, enquanto que a razão $\frac{1}{m}$ apresentou um valor médio de 1;32 · 10⁻⁴ (g · mm)⁻¹ com um desvio padrão de 0,08·10⁻⁴. A aplicação do teste do 2 de Pearson, com um nível de significância de 0,05, mostra que o conjunto de valores são extraídos de uma distribuição normal, o que sugere que a matriz do solo amostrado seja homogênea do ponto de vista da atenuação da radiação- emitida pelo 210 Pb.

Os coeficientes de atenuação linear dos padrões de atividade com matriz estéril de quartzo moído (SiO₂) de carbonato de cálcio (CaCO₃) foram obtidas através de cinco medidas independentes de $\frac{T}{I}$ para cada padrão. O padrão de SiO₂ moído apresentou um valor de de 0,0497 \pm 0,0007 mm⁻¹, enquanto que, para o padrão de CaCO₃, o valor obtido de foi de 0,0607 \pm 0,0008 mm⁻¹. Os valores obtidos de G() foram de (1;0345 \pm 0;0110) e de (0;8950 \pm 0;0094) para os padrões de quartzo moído e de carbonato de cálcio, respectivamente.

	Tabela 4.2: Valo	Tabela 4.2: Valores de $\frac{T}{l},~,$ m, $_{\overline{m}}$ e G() medidos nas amostras de solo.	3() medidos nas an	nostras de solo.	
Profundidade (m)	Massa (g)	1/1	μ (mm ⁻¹)	μ/m (g ⁻¹ mm ⁻¹)	(η) 5
		Perfil	no. 1		
0,00 - 0,30	$409,292\pm0,005$	$0,0787 \pm 0,0026$	$0,0514 \pm 0,0007$	+I	$1,010 \pm 0,009$
09'0 - 0'00	$443,778\pm0,005$	$0,0600 \pm 0,0023$	$0,0569 \pm 0,0008$	$(1,28 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	0.938 ± 0.009
06'0 - 09'0	$382,123\pm0,005$	$0,0748 \pm 0,0025$	$0,0525 \pm 0,0007$	+I	$1,000 \pm 0,010$
0,90 - 1,20	$381,235\pm0,005$	$0,0822 \pm 0,0025$	$0,0506 \pm 0,0006$	$(1,33 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,022 \pm 0,009$
1,20 - 1,50	$373,195\pm0,005$	$0,0875 \pm 0,0026$	$0,0493 \pm 0,0006$	$(1,32 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,040 \pm 0,009$
1,50 - 1,80	$370,225\pm0,005$	$0,0929 \pm 0,0025$	$0,0481 \pm 0,0006$	$(1,30 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,058 \pm 0,008$
1,80 - 2,10	$385,435\pm0,005$	$0,0862 \pm 0,0025$	$0,0496 \pm 0,0006$	$(1,29 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,036 \pm 0,009$
		Perfil I	no. 2		
0,00 - 0,30	$397,375\pm0,005$	$0,0766 \pm 0,0026$	$0,0520 \pm 0,0007$	$(1,31 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,002 \pm 0,009$
0,30 - 0,60	$430,340\pm0,005$	$0,0725 \pm 0,0024$	$0,0530 \pm 0,0010$	$(1,23 \pm 0,03) \cdot 10^{-4}$	$0,990 \pm 0,015$
06'0 - 09'0	$402,348\pm0,005$	$0,0619 \pm 0,0024$	$0,0563 \pm 0,0008$	$(1,40 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$0,950 \pm 0,010$
0,90 - 1,20	$392,720\pm0,005$	$0,0660 \pm 0,0024$	$0,0550 \pm 0,0008$	$(1,40 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$0,960 \pm 0,010$
1,20 - 1,50	399,763±0,005	$0,0697 \pm 0,0024$	$0,0539 \pm 0,0007$	± 0.02)	0.977 ± 0.009
1,50 - 1,80	$380,720\pm0,005$	$0,0790 \pm 0,0025$	$0,0514 \pm 0,0006$	$(1,35 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,010 \pm 0,009$
1,80 - 2,10	$391,187\pm0,005$	$0,0768 \pm 0,0024$	$0,0519 \pm 0,0006$	$(1,33 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,003 \pm 0,009$
		Perfil I	no. 3		
0,00 - 0,30	$416,675\pm0,005$	$0,0747 \pm 0,0022$	$0,0525 \pm 0,0006$	$(1,26 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$0,995 \pm 0,008$
09'0 - 0'00	$413,517\pm0,005$	$0,0693 \pm 0,0024$	$0,0540 \pm 0,0007$	$(1,31 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	0.975 ± 0.009
06'0 - 09'0	$402,168\pm0,005$	$0,0744 \pm 0,0024$	$0,0526 \pm 0,0006$	$(1,31 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$0,994 \pm 0,009$
0,90 - 1,20	$389,795\pm0,005$	$0,0801 \pm 0,0026$	$0,0511 \pm 0,0007$	$(1,31 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	+I
1,20 - 1,50	$387,278\pm0,005$	$0,0765 \pm 0,0024$	$0,0520 \pm 0,0007$	$(1,34 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,002 \pm 0,009$
1,50 - 1,80	$391,420\pm0,005$	$0,0688 \pm 0,0022$	$0,0542 \pm 0,0007$	$(1,38 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$0,973 \pm 0,009$
1,80 - 2,10	$379,901\pm0,005$	0.0831 ± 0.0026	$0,0503 \pm 0,0006$	$(1,32 \pm 0,02) \cdot 10^{-4}$	$1,025 \pm 0,009$

4.1.3 Uma estimativa da exatidão do método de correção do efeito de auto-absorção

Uma forma de se verificar a exatidão da correção do efeito de auto-absorção é confrontar a razão das taxas de contagem medidas em dois padrões de radioatividade com diferentes coeficientes de atenuação, como no caso dos padrões de quartzo moído (SiO₂) e de carbonato de cálcio (CaCO₃).

$$R_{\text{medido}} = \frac{\frac{P_{\text{SiO}_2}}{\Delta t_{\text{SiO}_2}}}{\frac{P_{\text{CaCO}_3}}{\Delta t_{\text{CaCO}_3}}}$$
(4.7)

com a razão entre as taxas de contagem calculadas utilizando as atividades totais e os fatores de correção

$$R_{calculado} = \frac{A_{SiO_2} \cdot G_{SiO_2}}{A_{CaCO_3} \cdot G_{CaCO_3}}$$
(4.8)

Se a correção proposta para o efeito de auto-absorção tiver uma boa exatidão, o que se espera é que R_{medido} e R_{calculado} coincidam dentro das incertezas de cada estimativa.

Substituindo os valores correspondentes a cada padrão tem-se

$$R_{medido} = 1; 22 \pm 0; 02$$
 e $R_{calculado} = 1; 22 \pm 0; 03$

A tabela 4.3 apresenta os valores das atividades totais do ²¹⁰Pb nas 21 amostras de solo analisadas, obtidos através da comparação com o padrão de quartzo moído e da comparação com o padrão de carbonato de cálcio. Os dois padrões forneceram valores coincidentes, de forma que, dentro dos erros experimentais, o procedimento de correção parece fornecer um resultado com boa exatidão.

Tabela 4.3: Atividade total do 210 Pb, em Bq, estimada pela média das atividades calculados pelo método de correção da auto-absorção com os padrões secundários de 210 Pb nas matrizes de SiO₂ e de CaCO₂.

Profundidade (metros)	Perfil no. 1	Perfil no. 2	Perfil no. 3
Atividade	e calculada co	m o padrão de	e SiO ₂
0,00 - 0,30	$16,6 \pm 0,9$	$19,2 \pm 0,9$	$12,2 \pm 0,8$
0,30 - 0,60	$14,0 \pm 1,0$	$17,5 \pm 0,9$	$14,6 \pm 0,9$
0,60 - 0,90	$12,6 \pm 0,9$	$15,3 \pm 0,8$	$14,2 \pm 0,8$
0,90 - 1,20	$12,3 \pm 0,8$	$13,4 \pm 0,9$	$12,9 \pm 0,8$
1,20 - 1,50	$13,6 \pm 0,8$	$13,1 \pm 0,8$	$14,9 \pm 0,8$
1,50 - 1,80	$12,1 \pm 0,8$	14.8 ± 0.8	$10,9 \pm 0,8$
1,80 - 2,10	$12,5 \pm 0,8$	$14,4 \pm 0,9$	$14,1 \pm 0,8$
Atividade	calculada con	n o padrão de	CaCO ₃
0,00 - 0,30	$16,6 \pm 0,9$	$19,2 \pm 0,9$	$12,2 \pm 0,8$
0,30 - 0,60	$14,0 \pm 1,0$	$17,5 \pm 0,9$	$14,6 \pm 0,9$
0,60 - 0,90	$12,6 \pm 0,9$	$15,3 \pm 0,8$	$14,2 \pm 0,8$
0,90 - 1,20	$12,3 \pm 0,8$	$13,4 \pm 0,9$	$12,9 \pm 0,8$
1,20 - 1,50	$13,6 \pm 0,8$	$13,1 \pm 0,8$	$14,9 \pm 0,8$
1,50 - 1,80	$12,1 \pm 0,8$	$14,8 \pm 0,8$	$10,9 \pm 0,8$
1,80 - 2,10	$12,5 \pm 0,8$	$14,4 \pm 0,9$	$14,1 \pm 0,8$

Perfís de atividade dos radionuclídeos das séries do urânio e do tório e atividade do ⁴⁰K no solo

5.1 Atividade dos radionuclídeos da série do ²³⁸U

A tabela 5.1 apresenta as atividades individuais do ²¹⁴Pb e do ²¹⁴Bi, calculadas com a equação 3.3, obtidas comparando seus picos de absorção total com os respectivos picos do padrão secundário LGTSI05. A mesma tabela também mostra as estimativas de atividade do ²²⁶Ra calculadas pela média ponderada das observações individuais da atividade dos seus produtos de decaimento, o ²¹⁴Pb e o ²¹⁴Bi, e os valores para a atividade do ²³⁸U, calculadas com a equação 3.7, para cada intervalo de amostragem dos perfís de solo. Todas as observações de atividade ficaram acima do limite de detecção.

A tabela 5.1 também apresenta o resultado dos teste do 2 , aplicado à estimativa de atividade média dos radionuclídeos da série do urânio. O número esperado de rejeições é de apenas uma, para o nível de significância de 5% com n - 1 graus de liberdade. O número observado de rejeições foi quatro.

A determinação da atividade do ²¹⁰Pb nos perfís é baseada nas medidas de solo não-perturbado pelo método de correção da absorção da energia de 46,5 keV, emitida pelo ²¹⁰Pb. As atividades totais e as atividades específicas obtidas para o ²¹⁰Pb são apresentadas na tabela 5.2.

labela	abela 5.1: Atividades individuais do 214Pb, do 214Pi, e atividades totais e específicas do 220Ka e do 200 nos tres pertis de solo.	214 DK (DA)	214 D: /D	1, e all'vidades to 214 D: (D~)	226 D (Da)(a)	7 NO 5	226 D2	23811/D~\(\begin{array}{c} 23811/D~\(\beta\end{array}\)	23811
	(295,2 keV)	(351,9 keV)	(609,3 keV)	(1764,5 keV)	ואמ (המ)	۲	(Bq/kg)	(ba) o	(Bq/kg)
				Perfil no.	1				
ATF1P30	$20,70\pm0,26$	$20,96\pm0,20$	$20,94\pm0,21$	$19,91\pm0,44$	$20,81\pm0,12$	5,35	$50,84\pm0,29$	$20,1\pm 1,5$	$49,1\pm 3,7$
ATF1P60	$22,46\pm0,27$	$22,90\pm0,21$	$22,56\pm0,22$	$21,83\pm0,47$	$22,61\pm0,13$	4,96	$50,95\pm0,29$	29,6±1,8	$66,7\pm 4,1$
ATF1P90	$18,27\pm0,27$	$19,36\pm0,19$	$18,79\pm0,20$	$18,37\pm0,43$	$18,88\pm0,12$	13,12	$49,41\pm0,29$	$22,2\pm 1,4$	$58,1\pm3,7$
ATF1P120	$19,10\pm0,28$	$19,52\pm0,20$	$19,04\pm 0,20$	$19,21\pm0,44$	$19,24\pm0,12$	3,27	$50,47\pm0,31$	$21,5\pm 1,4$	$56,4\pm 3,7$
ATF1P150	$19,06\pm0,26$	$18,93\pm0,18$	$18,50\pm0,20$	$18,79\pm0,44$	$18,80\pm0,11$	3,88	$50,35\pm0,29$	21,4±1,6	$57,3\pm4,3$
ATF1P180	$19,69\pm0,26$	$19,54\pm0,19$	$19,37\pm0,20$	$19,43\pm0,45$	$19,50\pm0,12$	1,09	$52,67\pm0,32$	$22,4\pm 1,6$	$60,5\pm 4,3$
ATF1P210	$19,18\pm0,26$	$19,20\pm0,19$	$19,07\pm0,20$	$18,05\pm0,43$	$19,07\pm0,12$	6,26	$49,48\pm0,31$	$21,0\pm 1,5$	$54,5\pm 3,9$
				Prefil no.	2				
ATF2P30	$21,75\pm0,27$	$21,41\pm0,20$	$21,70\pm0,21$	$21,29\pm0,45$	$21,57\pm0,12$	1,82	$54,28\pm0,30$	18,7±1,6	$47,1\pm 4,0$
ATF2P60	$22,32\pm0,28$	$22,76\pm0,22$	$22,41\pm0,22$	$21,93\pm0,47$	$22,48\pm0,13$	3,51	$52,24\pm0,30$	24,8±1,7	$57,6\pm 4,0$
ATF2P90	$20,47\pm0,26$	$21,47\pm0,20$	$20,87\pm0,21$	$20,62\pm0,44$	$20,98\pm0,12$	10,49	$52,14\pm0,30$	23,1±1,5	$57,4\pm3,7$
ATF2P120	$20,68\pm0,26$	$20,63\pm0,20$	$20,04\pm0,20$	$20,15\pm0,44$	$20,39\pm0,12$	00'9	$51,92\pm0,31$	$24,1\pm 1,5$	$61,4\pm 3,8$
ATF2P150	$16,20\pm0,25$	$16,68\pm0,17$	$17,36\pm0,18$	$16,65\pm0,42$	$16,82\pm0,11$	15,96	$42,07\pm0,28$	19,4±1,4	$48,5\pm3,5$
ATF2P180	$18,90\pm0,26$	$19,39\pm0,19$	$18,87\pm0,19$	$18,89\pm0,44$	$19,07\pm0,12$	4,49	$50,09\pm0,32$	23,6±1,5	$62,0\pm 3,9$
ATF2P210	$20,25\pm0,27$	$19,92\pm0,20$	$19,71\pm0,20$	$18,70\pm0,44$	$19,82\pm0,12$	9,72	$50,67\pm031$	19,4±1,4	$49,6\pm 3,6$
				Perfil no.	3				
ATF3P30	$17,02\pm0,24$	$17,00\pm0,18$	$17,45\pm0,18$	$16,50\pm0,41$	$17,13\pm0,11$	6,18	$41,11\pm0,26$	19,8±1,5	$47,4\pm 3,6$
ATF3P60	$21,70\pm0,29$	$22,05\pm0,20$	$21,69\pm0,22$	$21,78\pm0,45$	$21,84\pm0,13$	1,80	$52,82\pm0,31$	$22,9\pm1,5$	$55,4\pm 3,6$
ATF3P90	$20,54\pm0,26$	$20,55\pm0,20$	$20,21\pm0,20$	$20,08\pm0,46$	$20,39\pm0,12$	2,23	$50,70\pm0,30$	$24,6\pm 1,5$	$61,2\pm3,7$
ATF3P120	$19,89\pm0,26$	$19,93\pm0,20$	$19,98\pm0,20$	$19,58\pm0,43$	$19,91\pm0,12$	0,71	$51,08\pm0,31$	$21,1\pm 1,5$	54,1±3,8
ATF3P150	$19,39\pm0,25$	$19,80\pm0,19$	$19,48\pm0,20$	$19,27\pm0,45$	$19,57\pm0,12$	2,60	$50,53\pm0,31$	$25,1\pm 1,5$	$64,8\pm 3,9$
ATF3P180	$15,39\pm0,22$	$15,71\pm0,17$	$15,97\pm0,18$	$15,29\pm0,40$	$15,70\pm0,10$	5,29	$40,11\pm0,26$	17,8±1,4	$45,5\pm3,6$
ATF3P210	$18,90\pm0,27$	$19,17\pm0,20$	18,67±0,20	$18,85\pm0,43$	18,91±0,12	3,30	$49,78\pm0,32$	$22,5\pm1,6$	59,2±4,2

(a) Atividade obtida pela média das atividades individuais do ²¹⁴Pb e do ²¹⁴Bi ponderada por suas respectivas variâncias. (b) Atividade estimada, através da equação 3.7, pelo picos de absorção total de 185,7 keV do ²³⁵U e de 186,2 keV do ²²⁶Ra.

Tabela 5.2: Atividades totais e específicas do ²¹⁰Pb observados nas amostras de solo.

Profundidade	Massa	Atividade	Atividade			
(metros)	(g)	total (Bq)	específica (Bq/kg)			
	Perfil	no. 1				
0.00	400.000 0.005	400 00	44 0			
0,00 - 0,30	$409,292 \pm 0,005$	$16,6 \pm 0,9$	41 ± 2			
0,30 - 0,60	$443,778 \pm 0,005$	$14,0 \pm 1,0$	32 ± 2			
0,60 - 0,90	$382,123 \pm 0,005$	$12,6 \pm 0,9$	33 ± 2			
0,90 - 1,20	$381,235 \pm 0,005$	$12,3 \pm 0,8$	32 ± 2			
1,20 - 1,50	$373,195 \pm 0,005$	$13,6 \pm 0,8$	36 ± 2			
1,50 - 1,80	$370,225 \pm 0,005$	$12,1 \pm 0,8$	33 ± 2			
1,80 - 2,10	$385,435 \pm 0,005$	$12,5 \pm 0,8$	32 ± 2			
	D. Cl					
Perfil no. 2						
0,00 - 0,30	$397,375 \pm 0,005$	$19,2 \pm 0,9$	48 ± 2			
0,30 - 0,60	$430,340 \pm 0,005$	$17,5 \pm 0,9$	40 ± 2			
0,60 - 0,90	$402,720 \pm 0,005$	$17,3 \pm 0,3$ $15,3 \pm 0,8$	38 ± 2			
0,90 - 1,20	$392,720 \pm 0,005$	13.4 ± 0.9	34 ± 2			
1,20 - 1,50	$399,763 \pm 0,005$	$13,4 \pm 0,3$ $13,1 \pm 0,8$	34 ± 2 33 ± 2			
1,50 - 1,80	$380,720 \pm 0,005$	$13,1 \pm 0,8$ $14,8 \pm 0,8$	39 ± 2			
1,80 - 2,10	$391,187 \pm 0,005$	14.4 ± 0.9	39 ± 2 37 ± 2			
1,00 - 2,10	391,107 ± 0,003	14,4 ± 0,9	31 ± 2			
Perfil no. 3						
Periii 110. 3						
0,00 - 0,30	$416,675 \pm 0,005$	$12,2 \pm 0,8$	29 ± 2			
0,30 - 0,60	$413,517 \pm 0,005$	$14,6 \pm 0,9$	35 ± 2			
0,60 - 0,90	$402,168 \pm 0,005$	$14,2 \pm 0,8$	34 ± 2			
0,90 - 1,20	$389,795 \pm 0,005$	$12,9 \pm 0,8$	33 ± 2			
1,20 - 1,50	$387,278 \pm 0,005$	-	-			
1,50 - 1,80	$391,420 \pm 0,005$	-	-			
1,80 - 2,10	$379,901 \pm 0,005$	$14,1 \pm 0,8$	37 ± 2			

A figura 5.1 apresenta as concentrações dos radionuclídeos da série do urânio, o ²³⁸U, o ²²⁶Ra e o ²¹⁰Pb em função da profundidade dos perfís de solo. Nesta figura, os valores das concentrações correspondem à media dos valores observados a cada intervalo de 0,30 m de profundidade nos três perfís de atividade, exceto os intervalos de amostragem de 1,20 a 1,50 m e 1,50 a 1,80 m. Nessas profundidades os valores apresentados correspondem às médias dos dois primeiros perfís. A barra de erro vertical corresponde a um desvio padrão em torno do valor médio das atividades.



Figura 5.1: Atividades específicas do ²³⁸U (■), do ²²⁶Ra (♦) e do ²¹⁰Pb (●), expressas em Bq/kg, como função da profundidade do perfil de solo.

As profundidades apresentadas nesta figura correspondem ao centro do intervalo de amostragem e a barra de erro horizontal representa a metade do comprimento total do intervalo, 0,15 m.

Para profundidades maiores que 0,30 m as concentrações dos três radionuclídeos mostraram uma pequena variação com a profundidade. As concentrações de ²³⁸U caem de um valor próximo a 60 Bq/kg na transição do horizonte A para o horizonte B, para valores próximos a 55 Bq/kg em todo o horizonte B. As concentrações do ²²⁶Ra variam em valores em torno de 50 Bq/kg, enquanto as concentrações do ²¹⁰Pb variam em torno de 35 Bq/kg.

A figura 5.2 apresenta as razões entre as atividades do ²²⁶Ra e o ²³⁸U e entre o ²¹⁰Pb e o ²²⁶Ra como função da profundidade. Para profundidades maiores que

0,30 m as taxas de atividade são menores que 1, indicando que a série radioativa do urânio está em desequilíbrio radioativo em todo o horizonte *B*. O ²²⁶Ra está reduzido em relação ao ²³⁸U e o ²¹⁰Pb está reduzido em relação ao ²²⁶Ra neste horizonte.



Figura 5.2: Razões de atividade ²²⁶Ra/²³⁸U (♦) e ²¹⁰Pb/²²⁶Ra (■) como função da profundidade do solo. A barra de erro vertical representa um desvio padrão, e a barra de erro horizontal a metade do intervalo de amostragem.

Na figura 5.3 são apresentadas as concentrações do ²¹⁰Pb não suportado, em Bq/kg, definida como a diferença entre os valores observados e a concentração esperada, assumindo o equilíbrio radioativo secular entre o rádio e o chumbo, em função da profundidade. Estes valores indicam um empobrecimento do ²¹⁰Pb em relação ao ²²⁶Ra em todo o intervalo de solo amostrado. O empobrecimento é um pouco menor nos primeiros 0,30 m dos perfís, o que pode ser devido à precipitação do ²¹⁰Pb presente na atmosfera.

O desequilíbrio observado entre o ²¹⁰Pb e o ²²⁶Ra pode ser explicado pelo es-

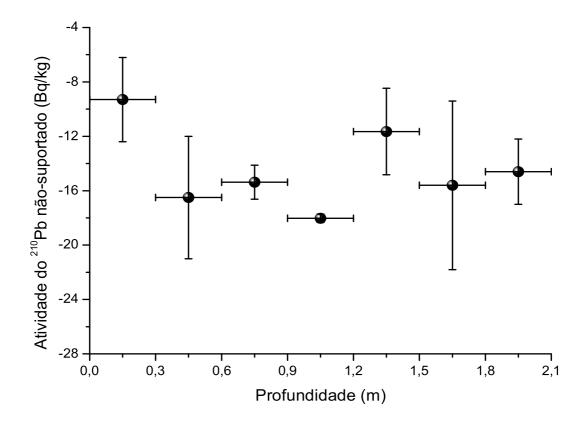


Figura 5.3: Concentração do ²¹⁰Pb não-suportado, em Bq/kg, em função da profundidade do solo. A incerta corresponde a um desvio padrão em torno da média.

cape do ²²²Rn para a atmosfera. O ²²²Rn é um membro da série do urânio produzido pelo decaimento- do ²²⁶Ra. Ele é um gás radioativo e inerte. Com uma meia-vida de cerca de 3,8 dias, o radônio entra no espaço de poro do solo por recuo direto devido ao decaimento- do rádio e pode migrar em distâncias de vários metros no solo (TANNER, 1964, 1980). O radônio escapa para a atmosfera e seu decaimento origina uma sequência de isótopos de meia-vida curta (meia-vida menor que 27 minutos) e produz o ²¹⁰Pb. Este isótopo radioativo de chumbo associa-se a partículas aerosóis e a partículas de poeira e retorna para a superfície do solo por precipitação e deposição seca. A taxa de atividade ²¹⁰Pb/²²⁶Ra e o ²¹⁰Pb não-suportado observados parecem refletir, ao menos em parte, este ciclo.

O perfil de concentração do ²²⁶Ra observado e a taxa de atividade entre o ²²⁶Ra

e o ²³⁸U do perfil podem refletir, em parte, o processo de fracionamento da série de decaimento do urânio entre o ²³⁸U e o ²³⁴U, onde o ²³⁴U é transferido para o espaço de poro e consequentemente transportado pela água presente nos poros do solo. A distribuição do ²²⁶Ra observada no perfil de 2,10 m de profundidade pode também refletir a absorção do rádio pela vegetação da Mata Atlântica durante um període de tempo muito longo e muito anterior a qualquer interferência humana significativa na floresta (GREEMAN et al., 1999).

5.2 Atividade dos radionuclídeos da série do ²³²Th

A tabela 5.3 apresenta as atividades individuais do ²²⁸Ac, do ²⁰⁸TI e as atividades totais do ²²⁸Ra, do ²²⁸Th e do ²³²Th para os três perfís de solo. As atividades do ²²⁸Ra e do ²²⁸Th são representados pelas atividades dos seus produtos de decaimento de meia-vida curta, o ²²⁸Ac e o ²⁰⁸TI respectivamente, desde que estabelecido o equilíbrio radioativo secular eles. A atividade do ²²⁸Ra foi calculada como sendo a média das estimativas de atividades do ²²⁸Ac, feita através dos seus picos de absorção total de 911,2 keV e de 969 keV de energia, e através da média das estimativas individuais de atividade do ²⁰⁸TI, calculada pelos picos de absorção total de 583,2 keV e de 860,6 keV de energia, foi calculada a atividade do ²²⁸Th. No cálculo das atividades foi adotado o mesmo procedimento adotado para a série do urânio, porém, utilizando-se o padrão de atividade LTGSI06.

As concentrações observadas do ²²⁸Th e do ²²⁸Ra permitiram a estimativa da razão de atividade ²²⁸Th/²²⁸Ra em torno de 1 para toda a camada de solo amostrado. Como esses dois isótopos possuem meias-vidas não muito distintas, 5,75 anos para o ²²⁸Ra e 1,91 anos para o ²²⁸Th, a taxa de atividade estimada indica que os dois isótopos, e toda a série radioativa a que pertencem, estão em equilíbrio radioativo secular com o ²³²Th. Portanto, a atividade do ²³²Th pode ser fornecida pela média ponderada das atividades individuais de cada pico de absorção total dos radionuclídeos

escolhidos pertencentes à sua série radioativa.

A atividade do ²³²Th pode ser estimada pela média das estimativas de atividade do ²²⁸Ac e do ²⁰⁸Tl, ponderada por suas respectivas variâncias. O teste do ² quando aplicado às estimativas de atividade do ²³²Th não apresentou nenhum valor fora do intervalo de confiança de 0,95.

A figura 5.4 apresenta a variação da atividade específica do ²³²Th como função da profundidade. A concentração do ²³²Th cresce de 80 Bq/kg, no horizonte O, para um valor próximo a 110 Bq/kg, no horizonte B.

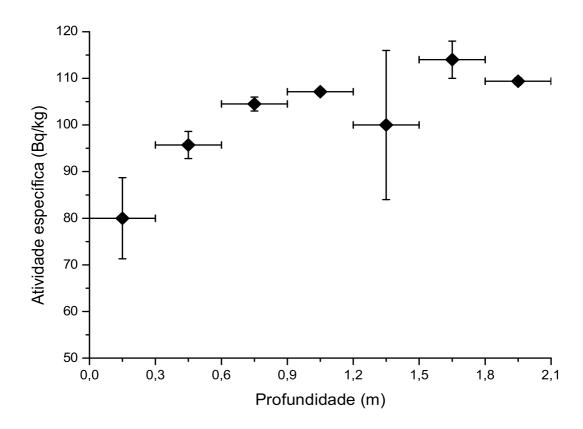


Figura 5.4: Atividade específica do ²³²Th como função da profundidade do solo.

Amostra	₂₂₈ Ac (Bd)	²²⁸ Ac (Bd)	²²⁸ Ra	208 TI (Bq)	²⁰⁸ TI (Bq)	²²⁸ Th	(Bq) 228 Ra 208 TI (Bq) 208 TI (Bq) 228 Th χ^2	χ^2
	(911,2 keV)	(969 keV)	$(Bq)^{(a)}$	(583,2 keV)	(860,6 keV)	(Bq) ^(b)	(Bq) ^(c)	
			ď	Perfil no. 1				
ATF1P30	$33,97\pm0,75$	$33,10\pm1,20$	$33,54\pm1,00$	$33,71\pm0,48$	$33,16\pm1,67$	$33,44\pm1,24$	$33,69\pm0,38$	0,49
ATF1P60	$41,46\pm0,89$	$41,90\pm 1,40$	41,68±1,17	$42,94\pm0,59$	41,39±1,96	$42,16\pm1,47$	$42,37\pm0,45$	2,34
ATF1P90	$39,04\pm0,92$	$39,05\pm1,34$	$39,04\pm1,15$	$39,40\pm0,55$	$40,11\pm 1,91$	$39,76\pm1,39$	$39,32\pm0,43$	0,33
ATF1P120	$41,49\pm0,97$	$41,64\pm1,45$	$41,56\pm 1,24$	$40,98\pm0,56$	$40,00\pm1,89$	$40,49\pm1,41$	$41,10\pm0,45$	0,68
ATF1P150	$40,88\pm0,95$	$41,38\pm 1,40$	$41,13\pm 1,20$	$41,97\pm0,58$	$41,32\pm 1,95$	$41,64\pm1,45$	$41,62\pm0,46$	1,00
ATF1P180	$42,56\pm0,96$	41,64±1,41	$42,10\pm1,21$	$44,01\pm0,61$	$42,80\pm 2,01$	$43,41\pm1,50$	$43,35\pm0,47$	3,38
ATF1P210	$41,64\pm0,99$	$41,12\pm1,39$	41,38±1,21	$42,79\pm0,59$	41,89±1,99	$42,38\pm1,48$	$42,30\pm0,46$	1,89
			ď	Prefil no. 2				
ATF2P30	$34,47\pm0,76$	$34,13\pm1,22$	$34,30\pm1,02$	$35,19\pm0,51$	$31,82\pm1,59$	$33,50\pm1,23$	$34,70\pm0,39$	4,52
ATF2P60	$39,34\pm0,92$	$40,08\pm1,39$	$39,71\pm1,17$	$40,47\pm0,56$	$37,59\pm1,80$	39,03±1,38	$40,00\pm0,44$	3,05
ATF2P90	$41,80\pm0,98$	$41,64\pm1,45$	$41,72\pm 1,24$	$43,07\pm0,59$	$42,27\pm2,00$	$42,67\pm1,48$	$42,59\pm0,46$	1,78
ATF2P120	$40,90\pm0,87$	$40,86\pm1,38$	40,88±1,16	$42,63\pm0,59$	$40,32\pm1,95$	41,48±1,48	$41,87\pm0,45$	4,07
ATF2P150	$34,85\pm0,75$	$34,13\pm1,20$	$34,49\pm1,01$	$36,10\pm0,52$	$35,12\pm1,74$	$35,61\pm1,30$	$35,52\pm0,39$	3,48
ATF2P180	$41,80\pm0,97$	$41,64\pm1,44$	$41,72\pm 1,23$	$43,01\pm0,60$	$40,67\pm1,95$	41,84±1,48	$42,45\pm0,47$	2,50
ATF2P210	$41,80\pm0,98$	41,64±1,38	$41,72\pm 1,20$	$42,75\pm0,59$	$44,17\pm2,12$	$43,46\pm2,17$	$42,48\pm0,46$	1,71
			ď	Perfil no. 3				
ATF3P30	$28,46\pm0,70$	$27,66\pm1,06$	28,06±0,90	$29,94\pm0,44$	$29,19\pm1,50$	29,56±1,12	$29,32\pm0,34$	5,92
ATF3P60	$40,11\pm0,96$	39,82±1,38	$39,97\pm1,19$	41,37±1,38	$39,03\pm1,84$	$40,20\pm1,64$	$40,79\pm0,45$	2,93
ATF3P90	$41,34\pm0,96$	$41,12\pm1,40$	41,23±1,20	$42,68\pm0,59$	$40,95\pm 2,03$	41,81±1,52	$42,11\pm0,46$	2,43
ATF3P120	$41,29\pm0,88$	$41,12\pm1,36$	41,21±1,15	$42,09\pm0,58$	40,68±1,96	41,39±1,47	$41,71\pm0,45$	1,1
ATF3P150	$41,18\pm0,97$	$40,84\pm1,36$	41,01±1,18	$42,32\pm0,59$	$40,78\pm1,92$	$41,52\pm1,44$	$41,73\pm0,46$	3,06
ATF3P180	$34,29\pm0,86$	$34,65\pm1,19$	$34,47\pm1,04$	$36,33\pm0,51$	$34,80\pm1,72$	$35,57\pm1,30$	$35,61\pm0,40$	5,22
ATE DO 4 C	70 0 . 07 07	00 7	0000	01.0.04		0, 1		1

(a) Obtida através da média das atividades individuais do ²²⁸Ac.
 (b) Atividade obtida pela média das atividades individuais do ²⁰⁸TI.
 (c) Média das atividades individuais do ²²⁸Ac e do ²⁰⁸TI, ponderada por suas variâncias.

5.3 Atividade do ⁴⁰K no solo

A tabela 5.4 apresenta as medidas de atividade do 40 K nas amostras de solo analisadas. Os resultados mostram uma grande variação nas atividades desse isótopo, com amostras abaixo do limite de detecção, em algumas profundidades. O valor máximo de atividade observado foi de $37,82 \pm 2,44$ Bq/kg, o que corresponde a uma concentração de potássio de $0,119 \pm 0,008$ % em massa.

Tabela 5.4: Atividades totais, específicas e concentrações do ⁴⁰K nas amostras de solo.

Amostra	Massa	Atividade	Atividade	Concentração
		total	específica	
	(g)	(Bq)	(Bq/kg)	(% em massa)
		Perfil no. 1		
ATF1P30	$409,292 \pm 0,005$	$8,83 \pm 0,96$	$21,57 \pm 2,35$	$0,068 \pm 0,007$
ATF1P60	$443,778 \pm 0,005$	$16,22 \pm 1,02$	$36,55 \pm 2,30$	$0,115 \pm 0,007$
ATF1P90	$382,123 \pm 0,005$	$2,25 \pm 0,93$	$5,89 \pm 2,43$	$0,018 \pm 0,008$
ATF1P120	$381,235 \pm 0,005$	$1,08 \pm 0,95$	$2,83 \pm 2,49$	$0,009 \pm 0,008$
ATF1P150	$373,195 \pm 0,005$	$2,34 \pm 0,92$	$6,27 \pm 2,46$	$0,020 \pm 0,008$
ATF1P180	$370,225 \pm 0,005$	$6,23 \pm 0,95$	$16,83 \pm 2,57$	$0,053 \pm 0,008$
ATF1P210	$385,435 \pm 0,005$	$11,35 \pm 1,00$	$29,45 \pm 2,59$	$0,093 \pm 0,008$
		Perfil no. 2		
ATF2P30	$397,375 \pm 0,005$	$12,40 \pm 0,98$	$31,21 \pm 2,47$	$0,098 \pm 0,008$
ATF2P60	$430,340 \pm 0,005$	$16,15 \pm 0,98$	$37,53 \pm 2,28$	$0,118 \pm 0,007$
ATF2P90	$402,720 \pm 0,005$	$12,58 \pm 0,97$	$31,27 \pm 2,41$	$0,098 \pm 0,008$
ATF2P120	$392,720 \pm 0,005$	$8,47 \pm 0,96$	$21,57 \pm 2,44$	$0,068 \pm 0,008$
ATF2P150	$399,763 \pm 0,005$	l. d.	-	-
ATF2P180	$380,720 \pm 0,005$	$12,33 \pm 0,99$	$32,39 \pm 2,60$	$0,102 \pm 0,008$
ATF2P210	$391,187 \pm 0,005$	$14,66 \pm 0,98$	$37,48 \pm 2,51$	$0,118 \pm 0,008$
		Perfil no. 3		
ATF3P30	$416,675 \pm 0,005$	l. d.	-	-
ATF3P60	$413,517 \pm 0,005$	$15,64 \pm 1,01$	$37,82 \pm 2,44$	$0,119 \pm 0,008$
ATF3P90	$402,168 \pm 0,005$	$4,97 \pm 0,94$	$12,36 \pm 2,34$	$0,039 \pm 0,007$
ATF3P120	$389,795 \pm 0,005$	$4,97 \pm 0,95$	$12,75 \pm 2,44$	$0,040 \pm 0,008$
ATF3P150	$387,278 \pm 0,005$	$6,20 \pm 0,95$	$16,01 \pm 2,45$	$0,050 \pm 0,008$
ATF3P180	$391,420 \pm 0,005$	l. d.	-	-
ATF3P210	$379,901 \pm 0,005$	$7,00 \pm 0,96$	$18,43 \pm 2,53$	$0,058 \pm 0,008$

I. d. – Atividade abaixo do limite de detecção.

6 Conclusão

As atividades dos radionuclídeos das séries do urânio, da série do tório, além da atividade do ⁴⁰K, foram medidas, utilizando-se a espectrometria- natural, em um solo não-perturbado retirados de uma área de Mata Atlântica localizada no Jardim Botânico da Secretadia de Meio Ambiente do Estado de São Paulo. Esta reserva se caracteriza por ser uma área livre da ação do homem há bastante tempo e, portanto, capaz de refletir o ciclo natural destes elementos. No local de coleta, o solo não tem sofrido ação humana direta desde, pelo menos, 1938. O solo foi amostrado em três furos feitos com trado manual, dispostos em um arranjo triangular com 1 metro de lado. As amostras foram retiradas em intervalos de 0,30 m e o comprimento total amostrado foi de 2,10 m.

As atividades do ²¹⁰Pb, nos perfís de solo, obtidas de forma independente a partir dos padrões secundários de atividade de ²¹⁰Pb nas matrizes de SiO₂ e de CaCO₃ são bem ajustados, dentro da estimativa do erro de cada uma das medidas, e mostraram que o método desenvolvido é bastante eficiente na correção do efeito da auto-absorção da radiação- de 46,5 keV de energia emitida pelo ²¹⁰Pb.

As medidas de atividade do ²³⁸U do ²²⁶Ra e do ²¹⁰Pb apresentaram uma pequena variação com a profundidade do solo. A atividade específica do ²²⁶Ra praticamente não varia ao longo dos 2,10 m de perfil de solo , enquanto que a atividade do ²¹⁰Pb decresce levemente dos horizontes O e A para o horizonte B. A atividade específica do ²³⁸U é pouco variável no horizonte B e superior à atividade observada nos horizontes O e A, refletindo, muito provávelmente, a distribuição de minerais de argila no solo.

6 Conclusão 58

A série do urânio está em desequilíbrio em toda a camada de solo amostrada com razões de atividade ²²⁶Ra/²³⁸U da ordem de 0,9 para profundidades superiores a 0,30 m e com razões de atividade de ²¹⁰Pb/²²⁶Ra com valores da ordem de 0,7 no mesmo intervalo de profundidades. A causa do desequilíbrio na série do urânio não pode ser estabalecida com base nos dados disponíveis. No entanto, pode-se especular que o desequilíbrio ²¹⁰Pb/²²⁶Ra seja devido, principalmente ao escape do ²²²Rn para o espaço de poro, seguindo, em parte, da sua difusão para a atmosfera e, em parte, do seu transporte pela água de solo.

A série do tório está em equilíbrio radioativo secular e a distribuição da atividade do ²³²Th reflete, como no caso do ²³⁸U, a distribuição de minerais de argila no solo.

O perfil de atividade do ⁴⁰K apresenta uma grande variação ao longo da camada de solo.

ABRAMOWITZ, M.; STEGUN, I. A. *Handbook of mathematical functions*. New York: Dover Publications, 1965.

APPLEBY, P. G.; RICHARDSON, N.; NOLAN, P. J. Self-absorption for well-type germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, v. 71, p. 228–233, 1992.

BENNINGER, L. K.; LEWIS, D. M.; TUREKIAN, K. K. The use of natural ²¹⁰Pb as a heavy metal tracer in the river estuarine system. In: CHURCH, T. M. (Ed.). *Marine Chemistry, Amer. Chem. Soc. Monogr.* Washington, D. C.: American Chemical Society, 1975.

BOLIVAR, J. P.; GARCIA-TENORIO, R.; GARCIA-LEON, M. A method for determination of counting efficiencies in -spectrometric measurements with HPGe detectors. *Nucle. Instrum. Methods A*, n. 206, p. 495–502, 1996.

COCCO, G.; FONFANI, L.; ZANAZZI, P. F. Potassium. In: WEDEPOHL K. H.; SHAW, D. M.; TUREKIAN, K. K.; ZEMANN, J. (Ed.). *Handbook of Geochemistry*. Berlin: Springer-Verlag, 1978. II-2.

CURRIE, L. A. Limits for qualitative detection and quantitative determination - application to radiochemistry. *Analytical Chemistry*, v. 40, p. 586–593, 1968.

CUTSHALL, N. H.; LARSE, I. L.; OLSEN, C. R. Direct analysis of ²¹⁰Pb in sediment samples: self-absorption corrections. *Nuclear Instruments and Methods*, v. 206, p. 309–312, 1983.

DEBETIN, K.; HELMER, R. G. *Gamma and x-ray spectrometry with semiconductor detectors*. New York: North Holland, 1988.

EDSFELDT, C. *The radium distribution in some* Swedish soils and its effect on radon emanation. Tese (Doutorado) — Division of Engineering Geology. Department of Civil and Environmental Engineering. Royal Institute of Technology, Stockholm, 2001.

EVANS, R. D. *The Atomic Nucleus*. New York: McGraw Hill, 1955.

FISENNE, I. M. Distribution of lead-210 and radium-228 in soil. In: *Rep. UCRL-18140*. Washington, D. C.: U. S. At. Energy Comm., 1968. p. 145–158.

FLEISCHER, R. L. Alpha-recoil damage and solution effects in minerals: uranium isotopic disequilibrium and radon release. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, n. 46, p. 2191–2201, 1982.

FLEISCHER, R. L. Alpha-recoil damage: Relation to isotopic disequilibrium and leaching of radionuclides. *Geochimica et Cosmichimica Acta*, n. 52, p. 1459–1466, 1988.

- GALLOWAY, R. B. Corrections for sample self-absorption in activity determination by gamma spectrometry. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, v. 300, p. 367–373, 1991.
- GREEMAN, D. J.; ROSE, A. W. Factors controlling the emanation of radon and thoron in soils of the eastern USA. *Chemical Geology*, n. 129, p. 1–14, 1996.
- GREEMAN, D. J.; ROSE, A. W.; JESTER, W. A. Form and behavior of radium, uranium, and thorium in Central Pensylvania soils derived from dolomite. *Geophysical Research Letters*, n. 17, p. 833–836, 1990.
- GREEMAN, D. J. et al. Geochemistry of radium in soils of the Eastern United States. *Applied Geochemistry*, n. 14, p. 365–385, 1999.
- HEIER, K. S.; BILLINGS, G. K. Potassium. In: WEDEPOHL K. H.; SHAW, D. M.; TUREKIAN, K. K.; ZEMANN, J. (Ed.). *Handbook of Geochemistry*. Berlin: Springer-Verlag, 1978. II-2.
- HUSSAIN, N. et al. A simplified tecnique for gamma-spectrometric analyis of ²¹⁰Pb in sediment samples. *Applied Radiation Isotopes*, v. 47, n. 4, p. 473–477, 1996.
- IMOBODEN, D. M.; STILLER, M. The influence of radon diffusion on the ²¹⁰Pb distribution in sediments. *Journal of Geophysical Research*, v. 87, p. 557–565, 1982.
- IVANOVICH, M.; HARMON, R. S. *Uranium-series Disequilibrium. Applications to Earth, Marine and Environmental Problems.* Second. Oxford: Clarendon Press, 1992.
- IYENGAR, M. A. R. The natural distribution of radium. In: *The environmental behaviour of radium*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1990, (IAEA Technical Report Series, 310). p. 59–128.
- JAWOROWSKI, W. Sources and the global cycle of radium. In: *The environmental behaviour of radium*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1990, (IAEA Technical Report Series, 310). p. 129–142.
- JUNGE, C. E. Air Chemistry and Radioactivity. New York: Academic Press, 1963. (International Geophysics Series, v. 4).
- KIGOSHI, K. Alpha-recoil ²³⁴Th: Dissolution into water and the ²³⁴U/²³⁸U disequilibrium in nature. *Science*, v. 173, p. 47–48, 1971.
- KOGAN, R.; NAZAROV, I. M.; FRIDMAN, S. D. Gamma spectrometry of natural environments and formations. Israel Program for Scientific Tranlations. [S.I.]: LTD, 1971.
- KRISHNASWAMI, S. et al. Radium, thorium and radioactive lead isotopes in groundwaters: Application to the in situ determination of adsorption-desorption rate constants and retardation factors. *Water Resouce Research*, v. 18, p. 1633–1675, 1982.

LANGMUIR, D. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, n. 42, p. 547–569, 1978.

- LANGMUIR, D.; HERMAN, J. S. The mobility of thorium in natural waters at low temperatures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, n. 44, p. 1753–1766, 1980.
- LINSALATA, P. Uranium and thorium decay series radionuclides in human and animal foodchains a review. *J. of Envir. Quality*, n. 23, p. 633–642, 1994.
- MARTELL, E. A.; MOORE, H. E. Tropospheric aerosol residence times: a critical review. *J. Res. Atmos.*, v. 8, p. 903–100, 1974.
- MEGUMI, K.; MAMURO, T. Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles. *Journal of Geophysical Research*, v. 79, n. 23, p. 3357–3360, 1974.
- MIGUEL, E. G. S. et al. ²¹⁰Pb determination by gamma spectrometry in volumial samples (cylindrical geometry). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, v. 493, p. 111–120, 2002.
- MOLINARI, J.; SNODGRASS, W. J. The chemistry and radiochemistry of radium and the other elements of the uranium and thorium natural decay series. In: *The environmental behaviour of radium*. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1990, (IAEA Technical Report Series, 310). p. 11–56.
- MOORE, H. E.; POET, S. E. ²¹⁰Pb fluxes determined from ²¹⁰Pb and ²²⁶Ra soil profiles. *Journal of Geophysical Research*, v. 81, n. 06, p. 1056–1058, 1976.
- MOORE, H. E.; POET, S. E.; MARTELL, E. A. ²²²Rn, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Bi and ²¹⁰Po profiles and aerosol residence times versus altitude. *Journal of Geophysical research*, v. 78, n. 30, p. 7065–7075, 1973.
- NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION. Ionizing radiation exposure of the population of the United States. In: *NCRP Rept. 93*. Bethesda, M. D.: NCRP, 1987.
- NAZAROFF, W. W. Radon transport from soil to air. *Reviews of Geophysics*, v. 30, p. 137–160, 1992.
- POET, S. E.; MOORE, H. E.; MARTELL, E. A. Lead-210, bismuth-210 and polonium-210 in the atmosphere: acurate ratio measurement and application to aerosol residence time determination. *J. Geophys. Res.*, v. 77, p. 6515–6527, 1972.
- PRESS, W. H. et al. *Numerical Recipes: The art of scientific computing*. Cambridge: Cambridge University Press, 1986.
- RANGARAJAN, C. A study of the mean residence time of the natural radioactive aerosols in the planetary boudary layer. *Journal of Envir. Radioactivity*, v. 15, n. 3, p. 193–206, 1992.
- REBELO, A. M. A.; BITTENCOUT, A. V. L.; MANTOVANI, L. E. Anomalias geoquímicas de U e de Th, solos residuais e geoformas em paisagens tropicais úmidas sobre granito. *Boletim Paranaense de Geociências*, v. 51, p. 33–44, 2002.

RIBEIRO, F. B. et al. Uranium and thorium series disequilibrium in quaternary carbonate deposits from the Serra da Bodoquena and Pantanal do Miranda, Mato Grosso do Sul State, Central Brazil. *Applied Radiation and Isotopes*, v. 54, p. 153–173, 2001.

SECRETARIA DE MEIO AMBIENTE DO ESTADO DE SÃO PAULO. Instituto de Botânica: Jardim Botânico . São Paulo, Acesso em: 15 fev. 2006. Disponível em: http://www.ibot.sp.gov.br/jardimbot/sobreojardim.htm>.

SEMKOW, T. M. Recoil-emanation theory applied to radon release from minerals grains. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1990.

SEMKOW, T. M.; PAREK, P. P. The role of radium distribution and porosity radon emanation from solids. *Geophysical Research Letters*, v. 17, p. 837–840, 1990.

SUN, H.; SEMKOW, T. M. Mobilization of thorium, radium and radon radionuclides in groundwater by sucessive alpha-recoils. *Journal of Hydrology*, v. 205, p. 126–136, 1997.

TANNER, A. B. Radon migration in the ground: A review. In: ADAMS, J. A. S.; LOWDER, W. M. (Ed.). *The Natural Radiation Environment Symposium*. Chicago: University of Chicago Press, 1964. p. 161–190.

TANNER, A. B. Radon migration in the ground: A suplementary review. In: GESSELL, T. F.; LOWDER, W. M. (Ed.). *Natural Radiation Environment III*. Washington, D. C.: Dep. of Energy, 1980. p. 5–56.

TUREKIAN, K. K.; NOZAKI, Y.; BENNINGER, L. K. Geochemistry of atmospheric radon and radon products. *Ann. Rev. Earth Planet Sci.*, v. 5, p. 227–255, 1977.

VARGAS, M. J. et al. Monte Carlo simulation of the self-absorption corrections for natural samples im gamma-ray spectrometry. *Applied Radiiation and Isotopes*, n. 57, p. 893–898, 2002.

VUOLO, J. H. *Fundamentos da teoria dos erros*. 2nd. ed. [S.I.]: Editora Edgard Blucher LTDA., 1996.

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

WASHINGTON, J. W.; ROSE, A. W. Regional and temporal relations of radon in soil gas to soil temperature and moisture. *Geophysical Research Letters*, n. 17, p. 829–832, 1990.

WASHINGTON, J. W.; ROSE, A. W. Temporal variability of radon concentration in the interstitial gas of soils in Pensylvania. *Journal of Geophysical Research*, n. 97(B6), p. 9145–9159, 1992.

APÊNDICE A - Modelo teórico para a correção do efeito de auto-absorção da radiação do ²¹⁰Pb - parte I

A correção do efeito de auto-absorção da radiação- com 46,5 keV de energia pela matriz estéril de uma fonte que contém ²¹⁰Pb homogêneamente disperso foi feita, neste trabalho, utilizando-se as equações 4.1, 4.2 e 4.5. Neste apêndice, será descrito o modelo que deu origem à equação 4.1 e a simplificação que permitiu a obtenção da equação 4.2. O modelo que levou à obtenção da equação 4.5 será descrito no apêndice B.

A.1 A equação para estimativa do coeficiente de atenuação linear μ

A figura 4.1 é reproduzida abaixo, como figura A.1, para simplificar a leitura do desenvolvimento que segue.

As hipóteses fundamentais do modelo a ser desenvolvido são:

- a) O efeito de atenuação ocorre exclusivamente na amostra, ou no padrão. Os efeitos de atenuação da radiação na solução que contém o ²¹⁰Pb, nos invólucros dos diferentes componentes do arranjo experimental e no ar contido nas espessuras e₁ e e₂, são desprezados.
- b) A interação da radiação- com o material contido na caixa porta-amostra, absorção por efeito fotoelétrico ou espalhamento Compton, removem o fóton do feixe de

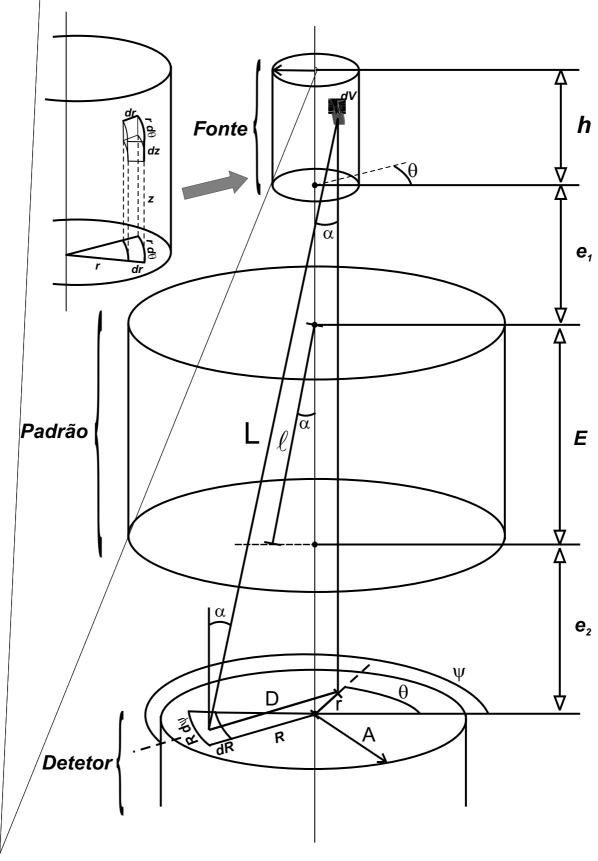


Figura A.1: Geometria para o ângulo sólido de um fóton incidente sobre a superfície do detector quando emitido por um padrão radioativo secundário localizado sobre a amostra de solo .

radiação proveniente da fonte, de forma que apenas a radiação primária é registrada no pico de absorção total com energia de 46,5 keV característico do ²¹⁰Pb. Essa hipótese será objeto de crítica no final ao apêndice B.

Observando o esquema da figura A.1, considere o ponto *P* no interior da fonte de ²¹⁰Pb com coordenadas cilíndricas *z*, *r* e , com *z* contado a partir da base da fonte, que varia de *0* a *h*, *r*, sendo a distância do ponto ao eixo da fonte, que varia de *0* a *a*, e o ângulo azimutal contado a partir de uma referência escolhida de forma arbitrária.

Considere também o elemento de área dA sobre a superfície do detector de germânio

$$dA = R dR d$$
 (A.1)

expresso em coordenadas polares com *R* origem no centro da face superior do detector e como ângulo azimutal sendo contado a partir da mesma referência escolhida para .

O ângulo sólido d Ω com que o ponto P enxerga o elemento de área dA é dado por

$$d\Omega = \frac{dA\cos}{L^2} \tag{A.2}$$

onde L é a distância de P ao centro de dA e é o angulo definido entre a normal de dA e a direção definida por L. Substituindo os parâmetros do arranjo experimental tem-se que

$$d\Omega = \frac{(z + e_1 + E + e_2)}{((z + e_1 + E + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--))^{\frac{3}{2}}} R dR d$$
 (A.3)

Sendo C_0 a atividade total da fonte de chumbo radioativo, a atividade devida à solução contida dentro do elemento de volume centrado em P é

$$C = \frac{C_0}{a^2 h} r dr d dz$$
 (A.4)

e a atividade emitida por esse elemento de volume por unidade de ângulo sólido é

$$C' = \frac{C_0}{4^2 a^2 h} r dr d dz \tag{A.5}$$

Sendo

$$= \frac{E}{z + e_1 + E + e_2} \sqrt{(z + e_1 + E + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--)}$$
 (A.6)

a fração da distância *L* correspondente ao interior da amostra, ou padrão, a intensidade da radiação primária emitida pelo elemento em torno de *P* que atinge *dA* é

$$dI = \frac{C_0 \, r \, dr \, d}{4^{-2} a^2 h} \cdot \frac{e^{-\frac{E}{z + e_1 + E + e_2}} \, \sqrt{(z + e_1 + E + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(-)} \, (z + e_1 + E + e_2) \, R}{\left((z + e_1 + E + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--)\right)^{\frac{3}{2}}} \, dR \, d$$

$$(A.7)$$

onde é o coeficiente de atenuação linear da amostra.

Integrando sobre a superfície do detector

$$I(z; r;) = \frac{C_0 r dr d}{4^{-2} a^2 h} \cdot \int_0^A \int_0^{+2} \frac{e^{-\frac{E}{z+e_1+E+e_2}} \sqrt{(z+e_1+E+e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--)} (z+e_1+E+e_2) R}{((z+e_1+E+e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--))^{\frac{3}{2}}} dR d \qquad (A.8)$$

obtem-se a intensidade da radiação primária emitida pelo elemento de volume em torno do ponto *P* que atinge a superfície do detector.

Integrando sobre o volume da fonte

$$I = \frac{C_0}{4^{-2}a^2h} \cdot \int_0^2 \int_{e_1 + E + e_2}^{h + e_1 + E + e_2} \int_0^a \int_0^A \int_0^{+2} \frac{e^{-\frac{E}{2}\sqrt{\frac{2+r^2 + R^2 - 2rR\cos(-)}{r}}} rR}{\left(\frac{2}{2} + r^2 + R^2 - 2rR\cos(-)\right)^{\frac{3}{2}}} d dR dr d d$$
(A.9)

onde = $z + e_1 + E + e_2$.

Uma vez que na integração em relação a o ângulo azimutal é mantido fixo e uma vez que a fonte de ²¹⁰Pb é homogênea, pode-se definir

$$\Lambda = -$$

cuja substituição em A.9 e a integração em relação a leva à equação 4.1

$$I = \frac{C_0}{2 a^2 h} \int_{e_4 + F + e_2}^{h + e_1 + E + e_2} \int_{0}^{a} \int_{0}^{A} \int_{0}^{2} \frac{e^{-\frac{E}{2} \sqrt{\frac{2}{2} + r^2 + R^2 - 2rR\cos\Delta}} rR}{(\frac{2}{2} + r^2 + R^2 - 2rR\cos\Delta)^{\frac{3}{2}}} d\Delta dR dr d$$
 (A.10)

A.2 A aproximação de fonte linear de radiação

Quando o raio a da fonte radioativa é muito pequeno em comparação com as dimensões da amostra, ou do padrão, e do detector de germânio, pode-se fazer uma abstração representada por uma fonte linear de radiação posta sobre a amostra e coincidindo no espaço com os eixos da amostra e do detector. A figura A.2 representa o modelo simplificado.

Nesse modelo, o ângulo sólido $d\Omega$ com que um ponto P sobre a fonte sobre enxerga um elemento de área sobre a superfície do detector é

$$d\Omega = \frac{(z + e_1 + E + e_2) R dR d}{((z + e_1 + E + e_2)^2 + R^2)^{\frac{3}{2}}}$$
(A.11)

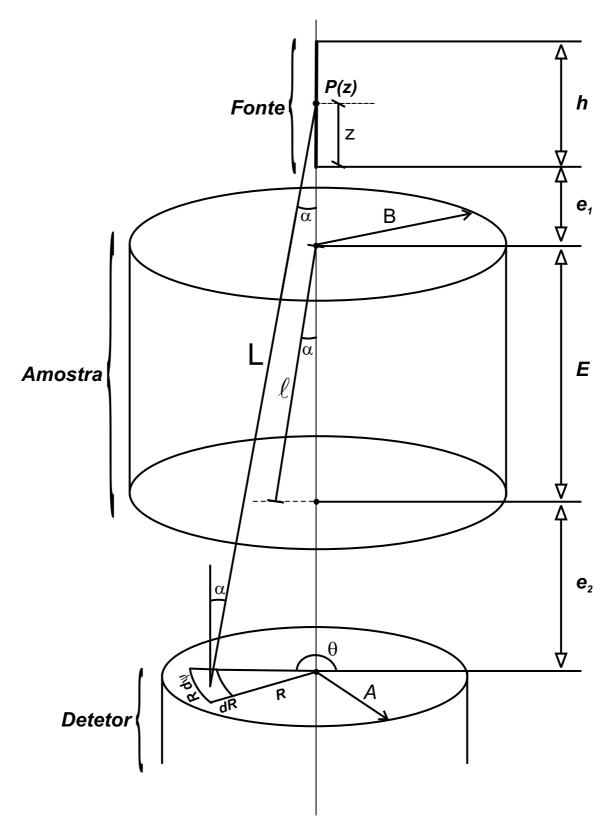


Figura A.2: Modelo geométrico com uma aproximação linear para a radiação primária incidente sobre a superfície do detector.

Definindo, por conveniência do desenvolvimento, uma nova variável

$$y = \frac{R}{z + e_1 + E + e_2}$$

o ângulo sólido dΩ possa ser escrito

$$d\Omega = \frac{y \, dy \, d}{(y^2 + 1)^{\frac{3}{2}}} \tag{A.12}$$

Sendo C_0 a atividade total da fonte de chumbo radioativo, a atividade emitida por um elemento de comprimento dz centrado em P da fonte por unidade de ângulo sólido é

$$C' = \frac{C_0 dz}{4 h} \tag{A.13}$$

sendo

$$= \frac{E}{z + e_1 + E + e_2} \sqrt{R^2 + (z + e_1 + E + e_2)^2}$$

$$= E \sqrt{y^2 + 1}$$
(A.14)

a fração da distância entre o ponto *P* da fonte radioativa e o elemento de área do detector, que corresponde ao interior da amostra, a intensidade da radiação primária emitida pelo elemento de comprimento e atinge *dA* é

$$dI = \frac{C_0 dz}{4 h} \cdot \frac{e^{-E \sqrt{y^2 + 1}}}{(y^2 + 1)^{\frac{3}{2}}} y dy d$$
 (A.15)

e a intensidade da radiação primária que atinge a supefície do detector é

$$I(z) = \frac{C_0 dz}{2h} \int_{0}^{\frac{A}{z+e_1+E+e_2}} \frac{e^{-E\sqrt{y^2+1}}}{(y^2+1)\sqrt{y^2+1}} y dy d$$
 (A.16)

Definindo uma nova variável

$$t = E \sqrt{y^2 + 1}$$

a intensidade da radiação primária sobre o detector passa a ser escrita como

$$I(z) = \frac{C_0 dz}{2h} \quad E \quad \int_{E}^{E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}} \frac{e^{-t}}{t^2} dt$$
 (A.17)

Integrando I(z) por partes

$$I(z) = \frac{C_0 dz}{2h} \ E \left(\frac{e^{-E}}{E} - \frac{e^{-E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}}}{E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}} - \int_{E}^{E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}} \frac{e^{-t}}{t} dt \right)$$
 (A.18)

Lembrando da definição da função (ABRAMOWITZ; STEGUN, 1965)

$$E_1 = \int_{t}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t} dt$$
 (A.19)

a intensidade da radiação primária proveniente do ponto P que atinge a superfície do detector é

$$I(z) = \frac{C_0 dz}{2h} \ E\left(\frac{e^{-E}}{E} - \frac{e^{-E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}}}{E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}} - E_1(E) + E_1\left(E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}\right)\right) \tag{A.20}$$

A intensidade total da radiação primária sobre a superfície do detector é

$$I(z) = \frac{C_0}{2h} \int\limits_0^h \biggl(\frac{e^{-E}}{E} - \frac{e^{-E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}}}{E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}} - E_1(E) + E_1\biggl(E\sqrt{\frac{A^2}{(z+e_1+E+e_2)^2}+1}\biggr) \biggr) dz \tag{A.21}$$

o que corresponde à equação 4.2. Na realidade, essa equação está escrita, no capítulo 4, em função da variável definida como

$$= z + e_1 + E + e_2$$

No caso do coeficiente de atenuação linear ser nulo, a equação I(z) se reduz a

$$\begin{split} I(z; &= 0) &= \frac{C_0}{2h} \int_0^h \left(1 - \frac{1}{\sqrt{\frac{A^2}{(z + e_1 + E + e_2)^2} + 1}} \right) dz \\ &= \frac{C_0}{2h} \left(h - \sqrt{A^2 + (h + e_1 + E + e_2)^2} + \sqrt{A^2 + (e_1 + E + e_2)^2} \right) \ (A.22) \end{split}$$

A.2.1 Fórmulas para o cálculo de $E_1(x)$

A função $E_1(x)$, equação A.19 pode ser aproximada, para valores inferiores ou iguais a 1, pela expansão em série (ABRAMOWITZ; STEGUN, 1965)

$$E_1(x) + \ln(x) = a_0 + a_1x + a_2x^2 + a_3x^3 + a_4x^4 + a_5x^5 + (x)$$
 (A.23)

onde os coeficientes a_n são dados na tabela A.1, com | (x) | $< 2 \cdot 10^{-7}$.

Para argumentos iguais ou superiores a 1, $E_1(x)$ pode ser calculada pela expansão racional (ABRAMOWITZ; STEGUN, 1965):

$$xe^{x}E_{1}(x) = \frac{x^{4} + b_{1}x^{3} + b_{2}x^{2} + b_{3}x + b_{4}}{x^{4} + c_{1}x^{3} + c_{2}x^{2} + c_{3}x + c_{4}} + (x)$$
(A.24)

com | (x) |< $2 \cdot 10^{-8}$.

Os coeficiente b_n e c_n utilizados na integração são fornecidos na tabela A.1.

Tabela A.1: Coeficientes da equações A.23 e A.24.

145014 / 1.1. 000	moloritos da oquaç	0007.2007.21.
$E_1(x) \leq 1$	E ₁ (x	() ≥ 1
$a_0 = -0,57721$	$b_1 = 8,57332$	$c_1 = 9,57332$
$a_1 = 0,99999$	$b_2 = 18,05901$	$c_2 = 25,63295$
$a_2 = -0,24991$	$b_3 = 8,63476$	$c_3 = 21,09965$
$a_3 = 0,05519$	$b_4 = 0,26777$	$c_4 = 3,95849$
$a_4 = -0,00976$		
$a_5 = 0,00107$		

APÊNDICE B - Modelo teórico para a correção do efeito de auto-absorção da radiação do ²¹⁰Pb - parte II

B.1 O desenvolvimento da equação 4.5

A correção do efeito de auto-absorção é feita através do modelo representado pela equação 4.5. Essa equação é deduzida, levando-se em conta a geometria de detecção esquematizada na figura B.1. A amostra, ou o padrão de radioatividade, com altura *E* e raio *a*, é posto sobre o detector fazendo com que o eixo de ambos coincidam. O espaço entre a superfície do detector e a base da amostra,o ou padrão, é e₂, incluindo a espessura dos diferentes invólucros.

A equação 4.5 é deduzida considerando-se, também que apenas a radiação primária proveniente do ²¹⁰Pb disperso em amostras e padrões contribui para a formação do pico de absorção total de 46,5 keV característico desse radionuclídeo. O invólucro da amostra, ou do padrão, e o ar contido entre a amostra e o detector não atenuam, nesse modelo, a radiação- .

Considere um ponto P no interior de uma amostra identificado pelas suas coordenadas cilíndricas z, contada a partir da base da amostra, a distância do eixo da amostra r e o ângulo azimutal , contado a partir de uma origem definida de forma arbitrária. Considere também um elemento de área

$$dA = R dR d (B.1)$$

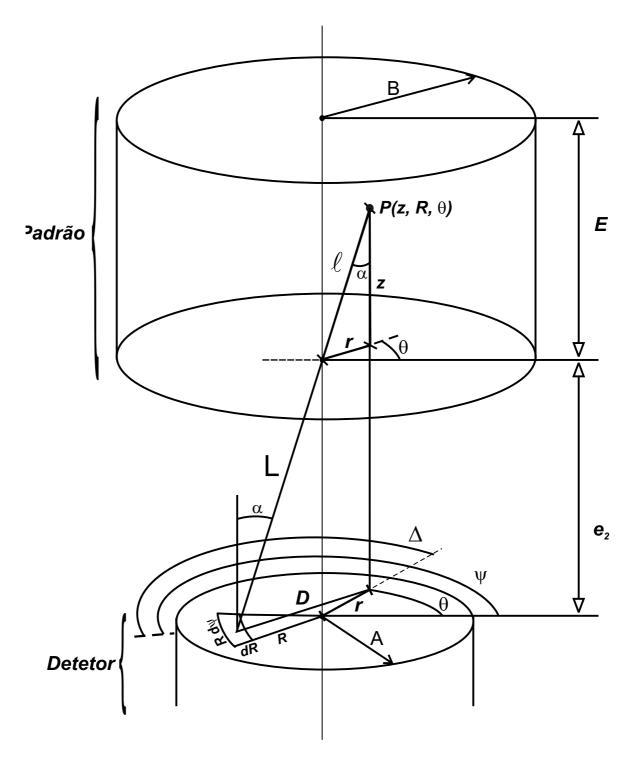


Figura B.1: Geometria para o ângulo sólido de um fóton incidente sobre a superfície do detector quando emitido por um padrão radioativo secundário sobre o detector.

definido sobre a face circular do detector e centrado em um ponto (P), identificado pelas suas coordenadas polares, raio vetor R e ângulo azimutal , medido a partir da mesma origem definida para .

Sendo o ângulo entre a normal do elemento de área e a direção definida pelo ponto *P* e pelo centro do elemento de área, o ângulo sólido com que *P* enxerga *dA* é dado por

$$d\Omega = \frac{\cos R dR d}{L^2}$$
 (B.2)

sendo L a distância entreP e P'. Da figura B.1 tem-se que

$$\cos = \frac{z + e_2}{L} \tag{B.3}$$

е

$$L = ((z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--))^{\frac{3}{2}}$$
 (B.4)

de onde

$$d\Omega = \frac{(z + e_2) R dR d}{((z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--))^{\frac{3}{2}}}$$
(B.5)

Sendo a atividade total da amostra C_0 , o fluxo de radiação primária, proveniente de um elemento de volume centrado em P e que atinge dA é:

$$C = \frac{C_0 r dr d}{4} \frac{dz}{^2B^2E} e^{-\frac{1}{2}} d\Omega$$
 (B.6)

onde

$$= \frac{z}{z + e_2} \sqrt{(z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--)}$$
 (B.7)

é a fração da distância *L* contida dentro do volume da amostra e é o seu coeficiente de atenuação linear. Das equações B.5, B.6 e B.7

$$C = \frac{C_0 r dr d dz}{4^{-2}B^2E} \cdot \frac{e^{-\frac{z}{z+e_2}} \sqrt{(z+e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(z-z)}}{((z+e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(z-z))^{\frac{3}{2}}} (z+e_2) R dR d$$
 (B.8)

Integrando sobre a supefície do detector e sobre o volume da amostra, a intensidade total da radiação primária que atinge o detector é dada por

$$I = \frac{C_0}{4^{-2}B^2E} \int\limits_0^z d \int\limits_0^E dz \int\limits_0^B r \, dr \int\limits_0^{+2} d \int\limits_0^A \frac{e^{-\frac{z}{z+e_2}} \sqrt{(z+e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(-)} (z+e_2) \, R}{\left((z+e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(--)\right)^{\frac{3}{2}}} \, dR \tag{B.9}$$

Como na integração em relação a , é mantido constante e como a distribuição do radionuclídeo ²¹⁰Pb é homogênea dentro do volume da amostra, pode-se definir uma nova variável

$$\Delta = -$$

O que leva à equação 4.5

$$I = \frac{C_0}{2 \ B^2 E} \int_0^E dz \int_0^B r \, dr \int_0^2 d\Delta \int_0^A \frac{e^{-\frac{z}{z + e_2}} \sqrt{(z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(\Delta)}}{((z + e_2)^2 + r^2 + R^2 - 2rR\cos(\Delta))^{\frac{3}{2}}} (z + e_2)$$

siderado, no modelo adotado, como sendo totalmente absorvido por efeito fotoelétrico ou espalhado por efeito Compton, de forma que a energia dos fótons espalhados fosse suficientemente inferior a 46,5 keV, não contribuindo com contagens na área do pico de absorção total do ²¹⁰Pb. A tabela B.2 apresenta a energia do fótons espalhados por efeito Compton, considerando que a energia inicial dos fótons é 46,5 keV, para ângulos de espalhamento variando de 0 a 90°.

Tabela B.1: Energia dos fótons espalhados por efeito Compton como função do ângulo de espalhamento, admitindo um feixe de fótons incidente com 46,5 keV de energia.

Ângulo de espalhamento	Energia do fóton espalhado (keV)
0°	46,5
5°	46,5
10°	46,4
15°	46,4
20°	46,2
25°	46,1
30°	45,9
35°	45,7
40°	45,5
45°	45,3
50°	45,0
55°	44,8
60°	44,5
65°	44,2
70°	43,9
75°	43,6
80°	43,2
85°	42,9
90°	42,6

Considerando que o valor médio da largura à meia altura (FWHM) do pico de absorção total com 46,5 keV de energia do ²¹⁰Pb, medido nas 21 amostras de solo, é de (1,02±0,06) keV, a incerteza correspondendo a um desvio padrão, fótons espalhados com ângulos de até 40° podem contribuir para a área do pico de absorção total. O resultado é um empilhamento de contagens (*build-up*) que não é levado em consideração nos modelos utilizados.

A probabilidade de que os fótons provenientes do decaimento radioativo do ²¹⁰Pb sofram espalhamneto Compton nas matrizes estéreis do quartzo moído e do carbo-

nato de cálcio dos padrões de radioatividade e provavelmente nas amostras é considerável. O carbono, o oxigênio e o silício, por exemplo, têm números atômicos 6, 8 e 14 respectivamente. Para fótons com energias entre 40 keV e 50 keV as probabilidades de absorção por efeito fotoelétrico e de espalhamento Compton são semelhantes (EVANS, 1955). O cálcio, por sua vez, tem número atômico 20 e, para energias entre 40 keV e 50 keV a absorção por efeito fotoelétrico é o processo dominante de interação com a radiação.

Os resultados de atividade de ²¹⁰Pb obtidos para as amostras de solo, utilizando um padrão de radioatividade com uma matriz de quartzo moído e um padrão de radioatividade com matriz de carbonato de cálcio, sugerem, mas não demonstram, que o efeito de empilhamento seja, pelo menos, parcialmente cancelado durante o processo de cálculo das atividades descrito no capítulo 4.

Livros Grátis

(http://www.livrosgratis.com.br)

Milhares de Livros para Download:

<u>Baixar</u>	livros	de	Adm	inis	tra	ção

Baixar livros de Agronomia

Baixar livros de Arquitetura

Baixar livros de Artes

Baixar livros de Astronomia

Baixar livros de Biologia Geral

Baixar livros de Ciência da Computação

Baixar livros de Ciência da Informação

Baixar livros de Ciência Política

Baixar livros de Ciências da Saúde

Baixar livros de Comunicação

Baixar livros do Conselho Nacional de Educação - CNE

Baixar livros de Defesa civil

Baixar livros de Direito

Baixar livros de Direitos humanos

Baixar livros de Economia

Baixar livros de Economia Doméstica

Baixar livros de Educação

Baixar livros de Educação - Trânsito

Baixar livros de Educação Física

Baixar livros de Engenharia Aeroespacial

Baixar livros de Farmácia

Baixar livros de Filosofia

Baixar livros de Física

Baixar livros de Geociências

Baixar livros de Geografia

Baixar livros de História

Baixar livros de Línguas

Baixar livros de Literatura

Baixar livros de Literatura de Cordel

Baixar livros de Literatura Infantil

Baixar livros de Matemática

Baixar livros de Medicina

Baixar livros de Medicina Veterinária

Baixar livros de Meio Ambiente

Baixar livros de Meteorologia

Baixar Monografias e TCC

Baixar livros Multidisciplinar

Baixar livros de Música

Baixar livros de Psicologia

Baixar livros de Química

Baixar livros de Saúde Coletiva

Baixar livros de Serviço Social

Baixar livros de Sociologia

Baixar livros de Teologia

Baixar livros de Trabalho

Baixar livros de Turismo