RADIOATIVIDADE NATURAL EM SOLOS DO MUNICÍPIO DE PIRACICABA

HELDER DE OLIVEIRA Físico

.•

Prof. Dr. EPAMINONDAS S.B. FERRAZ

Dissertação apresentada à Escola Superior de Agricultura "Luiz de Queiroz", da Universidade de São Paulo,para obtenção do título de Mestre em Agronomia. Área de Concentração: Energia Nuclear na Agricultura.

PIRACICABA

Estado de São Paulo - BRASIL

outubro, 1988

Oliveira, Helder de

048r

Radioatividade natural em solos do Município de Piracicaba. Piracicaba, 1988. 63p. ilus.

Diss.(Mestre) - ESALQ Bibliografia.

1. Espectrometria gama 2. Solo - Física - Pira cicaba, SP 3. Solo - Radioatividade - Piracicaba, SP I. Escola Superior de Agricultura Luiz de Que<u>i</u> roz, Piracicaba

CDD 631.43

RADIOATIVIDADE NATURAL EM SOLOS DO MUNICIPIO DE PIRACICABA

HELDER DE OLIVEIRA

Aprovada em: 21.12.88

Comissão julgadora:

Prof. Dr. Epaminondas S.B. Ferraz

Prof. Dr. Jefferson Mortati

Prof. Dr. Daniel Marcos Bonotto

ESALQ/USP

CENA/USP

IGCE/UNESP

Prof. Dr. / EPAMI NONDAS S. B. FERRAZ ORIENTADOR

A meus pais, à minha esposa, irmãos e sogros.

DEDI CO

E ao Prof. Dr. EPAMINONDAS S. B. FERRAZ

OFEREÇO

AGRADECI MENTOS

Ao Prof. Dr. Epaminondas S.B.Ferraz, pela orientação, paciência, auxílio, oportunidade, inc<u>ertivo</u> constante e amizade ao longo de minha f*i*rmação científica e realização deste trabalho;

A Dra. Elisabete A.De Nadai Fernandes, pelos ensinamentos, apoio e auxílio prestado;

Ao Prof. José Luiz I. Demattê, do Departamento de Solos, Geologia e Fertilizantes da ESALQ pela orientação, auxílio no transporte, apoio e gentileza na amostragem de solos deste trabalho;

A Roberto Forti e Dorival Grisotto, do Departamento de Solos, Geologia e Fertilizantes da ESALQ, pela amizade e disposição na coleta de amostras do Município de Piracicaba;

Aos colegas da seção de Radioisót_{opos} do CENA, Maria Valéria Lopes Cruz e José Osório Bertoli pelo auxílio e amizade;

As funcionárias da biblioteca do CENA, que sempre me atenderam com ajuda e gentileza;

Aos colegas da seção de Radioquimica e Química Analítica do CENA, pelo apoio e amizade;

iii

A Ademir Ruiz Pelai e Francisco Fraber Penha, do CIAGRI/ESALQ, pelos programas desenvolvidos no auxílio deste trabalho;

A Osmar Mureb Jacob da Secretaria Municipal de Agricultura-SEMA, pelo auxílio na localização das amostras no mapa do Município de Piracicaba;

Ao CNPq e CNEN, pelo auxílio financeiro;

Ao CENA e à ESALQ, pela oportunidade de aperfeiçoamento;

E a todos que conosco colaboraram para a realização deste trabalho.

SUMÁRI O

LI	STA DI	E FIGURAS	vii
LI	STA DI	E TABELAS	viii
RE	SUMO .		×
SU	MMARY		×i
1.	INTRO	DDUÇÃO	1
2.	FUND	AMENTOS	õ
	2.1.	Decaimento radioativo	6
	z.z.	Meia vida física	8
	2.3.	Transformações radioativas sucessivas	9
	2.4.	Equilíbrio radioativo e secular	14
	2.5,	Equilíbrio transitório e não equilíbrio	20
	2.6.	As séries radioativas naturais	23
З	MATERIAL E MÉTODOS		
	З.1.	Amostragem	27
	з. 2.	Preparo de amostras	33
	з. з.	Detecção	34
	3.4.	Escolha dos fotopicos	34
	3.5.	Radiação de fundo	37
	з. 6.	Eficiência de detecção	37
	з.7.	Cálculo da atividade	39

Página

4.	RESU	LTADOS E DISCUSSÃO	40
	4.1.	Curva de eficiência de detecção	40
	4.2.	Atividades específicas dos solos do	
		Município de Piracicaba	42
	4.3.	Perfil típico	46
	4.4.	Rochas do Município de Piracicaba	49
	4.5.	Solos agrícolas da região canavieira	
		do Estado de São Paulo	50
	4.6.	Solos de Poços de Caldas	52
	4.7.	Níveis de radioatividade natural em solos	
		encontrados em algumas regiões da Terra	53
5.	CONC	LUSÕES	57
RE	FERÈN	CIAS BIBLIOGRÁFICAS	59

LISTA DE FIGURAS

1	12	Equilíbrio secular	19
2		Equilíbrio transitório	22
З	_	Não há equilíbrio	22
4		Série do Rádio (4n+2)	24
5	-	Série do Tório (4n)	25
6	-	Série do Actínio (4n+3)	26
7	-	Localização do Município de Piracicaba no	
		Estado de São Paulo	28
8	-	Grandes Grupos de Solos do Município de	
		Piracicaba	30
9	-	Curva de eficiência de detecção para os raios	
		gama para a geometria utilizada	41
1(D -	Mapa do Município de Piracicaba, SP - Locais	
		de coleta das amostras	47

LISTA DE TABELAS

Página

1		As séries radioativas naturais	53
2		Solos do Município de Piracicaba	29
З	-	Rochas do Município de Piracicaba	31
4		Descrição das amostras de solos da região	
		canavieira do Estado de São Paulo	32
5	-	Amostras de solo da zona urbana de Poços de	
		Caldas/MG	32
6	-	Fotopicos detectados e computados como rotina	
		de trabalho, pertencentes as séries do Urânio,	
		Tório, Actínio, radiação de fundo (BG) e	
		outros radionuclídeos	36
7	-	Atividades dos radionuclídeos ²²⁶ Ra, ²³² Th,	
		⁴⁰ K e desvio padrão em amostras de solos	
		naturais da região de Piracicaba	43
8	-	Resumo das atividades específicas para o ²²⁶ Ra	
		²³² Th, ⁴⁰ K em Bq.kg ⁻¹ encontrados em amostras	
		do Município de Piracicaba	44

Página

9 -	Resultados das atividades referentes aos	
	radionuclídeos ²²⁶ Ra e ²³² Th, e a razão entre	
	(Th/Ra) dos grandes grupos de solos do	
	Município de Piracicaba	45
10-	Atividade específica para os radionuclídeos	
	Ra, ²⁹² The ⁴⁰ K encontrados no perfil de	
	solo da série Luiz de Queiróz (TRE)	48
11-	Atividade dos radionuclídeos ²²⁶ Ra, ²³² Th, ⁴⁰ K	
	em Bq.kg ⁻¹ e razão entre (Th/Ra) em rochas do	
	do Município de Piracicaba	50
12-	Atividades dos radionuclídeos ²²⁶ Ra, ²³² Th	
	e ⁴⁰ K em amostras superficiais de solos da	
	região canavieira do Estado de São Paulo	50
13-	Atividade específica dos radionuclídeos 220 Ra,	
	²³² Th e ⁴⁰ K em Bq.kg ⁻¹ e a razão entre (Th/Ra)	
	em amostras de solo localizadas na zona urbana	
	de Poços de Caldas,MG	52
14-	Atividade média e limites da concentração dos	
	radionuclídeos da série ²²⁶ Ra e ²³² Th	
	encontradas em solos agricolas	54
15-	Atividade dos radionuclideos ²²⁰ Ra e ²⁹² Th e	
	⁴⁰ K em Bq.kg ⁻¹ de solos, de diversas partes da	
	Terra	55
16-	Atividade dos radionuclídeos ²²⁶ Ra e ²³² Th	
	em rochas ígneas e sedimentares	36

•

RADIOATIVIDADE NATURAL EM SOLOS DO MUNICIPIO DE PIRACICABA

Autor: Helder de Oliveira

Orientador: Prof. Dr. Epaminondas S. B. Ferraz

1

RESUMO

Por espectrometria gama de alta resolução, determinou-se a radioatividade específica de solos e rochas no Município de Piracicaba, SP. Para isso, utilizou-se dos radionuclídeos das séries do Urânio, Tório e Actínio e outros de interesse como o ⁴⁰K e o ¹³⁷Cs. Foram coletadas amostras a 60 cm de profundidade de solos representativos ao nível de Grandes Grupos e também amostras de rochas típicas da região. Após o preparo, as amostras lacradas foram deixadas em repouso até atingirem uma condição próxima do equilíbrio secular e então foi efetuada a contagem na região do fotopicos mais importantes dos componentes de cada série. A média ponderada de radioatividade específica dos solos do município, foi de 24,1 Bq.kg⁻¹ para o 226 Ra e 34,8 Bq.kg⁻¹ para o ²³²Th.

NATURAL RADIOACTIVITY IN SOILS FROM PIRACICABA, SP (BRAZIL)

Author: Helder de Oliveira

Adviser: Prof. Dr. Epaminondas S. B. Ferraz

SUMMARY

Using high resolution gamma spectrometry, the specific radioactivity of soils and rocks from Piracicaba, SP (BRAZIL) was determined. For this purpose, the Ra, Th and Ac natural series and some other nuclides such as 40 K and 137 Cs were considered. Soil samples representing the main Soil Groups were collected at a 60-cm depth. Tipical rock samples were also collected. After initial sample preparation, the sealed samples were allowed to rest until reaching the conditions approaching the secular equilibrium. Thereafter, counting was carried out, peak areas being the measurement basis. The mean ponderated values for soil specific activity were 24.1 and 34.8 Bg.kg⁻¹ for the ²²⁶Ra and ²³²Th, respectively.

1. INTRODUÇÃO

A vida no planeta desenvolveu-se num ambiente sujeito às radiações de fundo, originárias de rochas que compõem a crostra terrestre, e radiações de origem extra terrestre Distingue-se na radioatividade ambiental, tres origens: a cósmomica, a antropica e a geológica.

As radiações primárias parte do sol e parte extragalática, constituída de prótons (85%), partículas alfa (14%) e núcleos de número atômico entre 2 e 26, extremamente energéticas, atingem ininterruptamente a atmosfera, interagindo com seus átomos e produzindo outras radiações (WILSON,1981).

ţ

Estas radiações, interagindo com as partículas alfa, resultam na radiação cósmica secundária, constituída de mésons pi-zero, que se desintegram em fótons e conforme a energia destes, resultam na criação de par, formando elétrons, pósitrons (OKUNO, 1988), e produz elementos como o Trítio (3 H), Sódio-22 (${}^{22}N_{\alpha}$), Berílio-7 (7 Be), Carbono-14 (14 C), que são incorporados no meio ambiente (CARVALHO,1975).

O nível de radiação cósmica varia com a altitude em relação ao nível do mar. Segundo GOMES (1988), ela triplica a 2.000 m; é multiplicada por 160 a 10.000 m (altitude de cruzeiro e jatos comerciais) e por 450 a cerca de 20.000 m (altitude dos vôos supersônicos). A intensidade varia também com a latitude, uma vez que o campo magnético terrestre desvia partículas carregadas eletricamente, sendo maior nos polos que na zona equatorial.

A radioatividade de origem cósmica, corresponde a uma dose média de 0,44 a 2,5 milisieverts por ano de exposição externa no ser humano (OKUNO,1988 ε GOMES,1988).

A partir de 1896, quando Roentgen descobriu e observou a produção de um novo tipo de radiação, os Raios-X, o homem tem produzido um grande número de radionuclídeos artificiais, assim denominados por não serem encontrados na natureza. Somando-se com as fontes naturais, isso vem contribuindo para o aumento da radiação

2

de fundo, aumentando a taxa de exposição nas populações mundiais.

A radicatividade antrópica tem acrescido à radiação de fundo em diversas formas como aplicações de artefatos bélicos, experimentos nucleares em medicina e indústria e por acidentes como por exemplo Three Mile Island e Tchernobyl.

A disseminação do material radioativo pode tipo ocorrer ainda em acidentes do de Goiânia (FERRAZ,1988) ou pelo uso de fertilizantes agrícolas, com o fosfato que provém de rochas cristalinas sedimentares, metasedimentares. 0 fosfato contém apreciáveis concentrações de nuclídeos radioativos naturais das séries do Urânio-238, Tório-232 e seus descendentes (ROESSLER et alii, 1983).

A formação dos elementos estáveis e radioativos naturais, a partir de um plasma gasoso de elevada temperatura, juntamente com a Terra, originou as séries radioativas (STEIN,1973).

A denominada radioatividade natural é aquela proveniente da formação geológica remanescente da época de formação do planeta. TAUHATA ε ALMEIDA (1984), relatam amostras de rochas contendo duas vezes mais 232 Th e 238 U do que solos e ainda a presença de outro radionuclídeo, o 40 K cuja meia vida é de 1,28 x 10 9 anos. GOMES (1988) estima em no máximo 0,6 mSv/ano a dose recebida, em média, pelo homem, dos elementos pertencentes às séries do 238 U e 232 Th.

O estudo de regiões habitadas de elevada radioatividade natural, pelas oportunidades que oferecem de observação de possíveis efeitos biológicos, induzidos no homem por irradiação crônica prolongada, tem sido recomendado por vários organismos internacionais (PENNA FRANCA, 1968).

É evidente que existe uma variabilidade muito grande de radioatividade natural em solos nas diversas regiões da face da Terra. No Brasil, duas regiões dêste tipo foram investigadas, a faixa ao longo da Costa do Espírito Santo, onde ocorrem depósitos de areias monazíticas, rica em terras raras e óxido de tório, e a região de centros vulcânicos alcalinos em Minas Gerais. Nessas regiões, um indivíduo normal, está exposto a algumas dezenas de milisieverts por ano CPENNA FRANCA, 1988 & VASCONCELOS et alii 1987). Os estudos físicos dos produtos radioativos naturais, mostraram que os elementos pesados pertencem a três cadeias, famílias ou séries radioativas. Uma quarta série, não se encontra completa na natureza e em quantidades apreciáveis, em virtude da meia vida relativamente curta de seus descendentes.

As três primeiras séries radicativas naturais são chamadas respectivamente de série do Rádio, Tório e Actínio. A quarta série é denominada série do Neptúnio. Os elementos cujos nomes são usados como qualificativos das séries, ou são o primeiro têrmo, ou um dos primeiros e mais importantes constituintes, como é o caso do Rádio que dá nome a série, mas cujo pai é o ²³⁸U.

Com o intuito de se iniciar um levantamento da radioatividade natural, foram escolhidas das séries naturais, a série do Urânio e a do Tório.

O presente trabalho tem por objetivo fazer um levantamento da radioatividade natural de origem geológica no Município de Piracicaba, SP. Onde para tal, foram coletadas amostras de solos típicos da região a nível de Grandes Grupos e medida sua radioatividade.

5

2. FUNDAMENTOS

2.1. Decaimento radioativo

Quando um átomo instável emite partículas, perde energia e sofre um processo chamado de decaimento radioativo, fenômeno espontâneo e aleatório. Consideremos que em um tempo t existam N núcleos radioativos, então o número provável de desintegrações que ocorrerão na unidade de tempo é λN , portanto:

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N \qquad (1)$$

o sinal negativo representa a diminuição do número de átomos que se desintegram uni da**de** tempo, na de e λ é a probabilidade de ocorrência do evento, uma para cada nuclídeo, que independe das constante condições do meio, ou da combinação química,

pressão ou temperatura. Reescrevendo e integrando a equação 1, tem-se:

$$-\frac{dN}{N} = \lambda dt,$$

$$N = N_0 e^{-\lambda t}$$
(2)

•

onde: No representa o número inicial de átomos radioativos

Essa equação mostra que o número de átomos radioativos que se desintegram decresce exponencialmente com o tempo.

A razão de desintegração de uma amostra na unidade de tempo pode ser definida como Atividade, que é proporcional ao número de átomos instáveis. Assim também varia exponencialmente com o tempo.

$$A = \lambda N = \lambda N_{0} e^{-\lambda t} = A_{0} e^{-\lambda t} \qquad (3)$$

sendo Ao a atividade inicial da amostra.

2.2. Meia vida física

A meia vida física (T) é o intervalo de tempo a partir de t = 0, necessário para que o número de átomos de um elemento se reduza à metade, independentemente de seu valor inicial.

A meia vida pode ser relacionada com a constante de desintegração (λ), partindo-se da equação (3), quando t = T, temos:

$$\frac{N_{o}}{2} = N_{o} e^{-\lambda T}$$

ou

$$\frac{\ln \frac{1}{2}}{2} = -\lambda T$$

 $\ln 2 = \lambda T$

 λ T = 0,693

$$T = \frac{0.893}{\lambda}$$
 (4)

2.3. Transformações radioativas sucessivas

Após uma transformação radioativa, alguns nuclídeos ainda continuam instáveis, desintegrando-se novamente, e assim por diante, até resultarem em um núcleo estável. Essas transformações sucessivas são denominadas séries.

Em cada série existe um elemento denominado pai que por transmutação dá origem a um núcleo filhò, com concomitante emissão de algum tipo de radiação, e assim_sucessivamente até que o último elemento que é estável termina a série.

Admita-se uma série radicativa com apenas três elementos, Á, B e C . Seja o elemento A (elemento pai) que se desintegra em um elemento B (elemento filho), e este que se desintegra produzindo um elemento estável C. Seja Ao o número de átomos de A no instante t = 0, para o qual existem apenas átomos de A, isto é, não existe nenhum átomo do elemento B (filho), e portanto, nenhum de C.

Sempre que se desintegrar um átomo do elemento A, aumentará o número de átomos do elemento B e a cada desintegração de B, haverá um aumento de átomos de um outro elemento C (não levando em consideração a redução do número de átomos de BD.

Sejam Na, Nb e Nc o número de átomos de cada um dos três elementos A, B e C, respectivamente e λa , λb , e λc suas constantes de desintegração. O sistema de equações diferenciais que descreve a série, é:

$$\frac{dNa}{dt} = -\lambda a Na$$
 (5)

$$\frac{dNb}{dt} = \lambda a Na - \lambda b Nb$$
 (6)

$$\frac{dNe}{dt} = \lambda b Nb$$
 (7)

onde cada núcleo que decai, segundo a equação (5) produzum núcleo com decaimento segundo a equação (6), que por sua vez produz um núcleo estável do tipo da equação (7).

Pode-se reescrever a equação (6), em termos de número de átomos do elemento filho B, no instante t, como sendo:

$$Nb = \frac{\lambda a No}{\lambda a - \lambda b} \cdot (e^{-\lambda a t} - e^{-\lambda b t} + Nb e^{-\lambda b t}) \quad (8)$$

Sendo a atividade de B Nb λ b e não dNb/dt, pode-se reescrever a equação (8) em termos de atividade,

Nblb =
$$\lambda a Na_{a}$$
. $\frac{\lambda b}{\lambda b - \lambda a}$. $(e^{-\lambda a t} - e^{-\lambda b t} + Nb e^{-\lambda b t})$ (g)

Admitindo-se que no instante t=0 o número de átomos do núcleo B seja $Nb_0 e Na_0$ o número de átomos de A no mesmo instante t=0, o número de átomos do terceiro elemento, supondo C elemento estável da série, pode ser representado pela expressão:

$$Nc = Nc_{o} + Nb_{o}(1 - e^{-\lambda bt}) + Na_{o}(1 + \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a} e^{-\lambda bt} - \frac{\lambda b}{\lambda b - \lambda a}$$

$$-\frac{\lambda b}{\lambda b-\lambda a} e^{-\lambda a t}$$
 (10)

Se no instante t = 0 não existir átomos dos elementos B e C, isto é, não existem A e B no

11

instante origem t = 0. Nesse caso, tem-se: $Na_o = N_o$, $Nb_o = Nc_o = 0$ portanto, os números No e Nc de átomos dos filhos B e C, podem ser representados como:

$$Nb = \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a}, No C e^{-\lambda a t} - e^{-\lambda b t}$$
 (11)

$$N_{c} = N_{o} (1 + \frac{\lambda_{a}}{\lambda_{b-\lambda_{a}}} e^{-\lambda_{b}t} - \frac{\lambda_{b}}{\lambda_{b-\lambda_{a}}} e^{-\lambda_{a}t}) (12)$$

As equações (2), (8) e (10) se referem a um, dois ou três elementos radioativos, casos especiais da equação geral de Bateman (KAPLAN,1972). Â medida que aumentam os elementos da série, o sistema de equações diferenciais é ampliado. Para uma série com n elementos, tem-se:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \qquad (13)$$

$$\frac{dNz}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2; \qquad (13a)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3; \qquad (13b)$$

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n \qquad (13c)$$

cuja solução foi deduzida por Bateman, supondo que no instante t=0 exista apenas o elemento pai da série, isto é, com as seguintes condições iniciais:

$$t = 0; N_1 = N_0; N_0 = N_0 = ... = N_0 = 0$$

Então, o número de átomos do n-ésimo têrmo da cadeia será dado por:

$$N_{n}(t) = N_{0}(h_{\theta} - \lambda_{1}t + h_{\theta} - \lambda_{2}t + h_{\theta} - \lambda_{3}t + \dots + h_{n-1}e^{-\lambda_{n-1}t} + h_{\theta} - \lambda_{n-1}t + h_{\theta} - \lambda_{$$

onde:

$$h_{1} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{n} - \lambda_{1}} \cdot \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{2} - \lambda_{1}} \cdot \frac{\lambda_{3}}{\lambda_{3} - \lambda_{1}} \cdot \cdot \cdot \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_{1}}$$

$$h_{2} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{1} - \lambda_{2}} \cdot \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{n} - \lambda_{2}} \cdot \frac{\lambda_{3}}{\lambda_{3} - \lambda_{2}} \cdots \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_{2}}$$

$$\vdots$$

$$h_{n-1} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{1} - \lambda_{n-1}} \cdot \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{2} - \lambda_{n-1}} \cdot \frac{\lambda_{3}}{\lambda_{3} - \lambda_{n-1}} \cdots \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n} - \lambda_{n-1}}$$

$$h_{n} = \frac{\lambda_{1}}{\lambda_{1} - \lambda_{n}} \cdot \frac{\lambda_{2}}{\lambda_{2} - \lambda_{n}} \cdot \frac{\lambda_{3}}{\lambda_{3} - \lambda_{n}} \cdot \cdot \cdot \frac{\lambda_{n-1}}{\lambda_{n-1} - \lambda_{n}}$$

A soma dos coeficientes (h_n) deve ser igual a zero, pelas condições iniciais de contorno.

2.4. Equilíbrio radioativo e secular

Utiliza-se o termo equilíbrio para se expressar a condição em que a derivada de uma função no decorrer do tempo seja nula. Ao se aplicar esta condição, os membros de uma série radioativa descrita pelas equações (14), cujas derivadas dN1/dt, dN2/dt,...,dNn/dt devem ser iguais a zero, ou seja, o número de átomos de qualquer termo da cadeia deve ser constante. As condições de equilíbrio conforme as equações (12) são:

$$\frac{dN_{1}}{dt} = -\lambda_{1}N_{1} = 0$$
(15)

$$\lambda_{1}N_{1} = \lambda_{2}N_{2} ;$$
(15a)

$$\lambda_{2}N_{2} = \lambda_{3}N_{3} ;$$
(15b)

$$\vdots$$

$$\lambda_{n-1}N_{n-1} = \lambda_{n}N_{n}$$
(15c)

condição necessária mas não suficiente para designar se o elemento predecessor é radioativo, pois as equações (15,a,b,c) implicam em que a constante de desintegração seja igual a zero ($\lambda_1=0$), o que é absurdo. Mas pode-se alcançar um estado próximo ao equilíbrio radioativo, quando a meia vida de um elemento possuir uma dimensão de várias ordens de grandeza maior em relação à meia vida de seus descendentes, condição que se satisfaz para as séries dos elementos radioativos naturais (EVANS, 1972).

As equações (15,a,b,c) constituem uma aproximação suficientemente aceitável e válida para este tipo de equilíbrio radioativo, que é denominado de *equilíbrio secula*r, o qual satisfaz a condição: $\lambda_{i}N_{i} = \lambda_{z}N_{z} = \lambda_{a}N_{a} = \dots = \lambda_{n-i}N_{n-i} = \lambda_{n}N_{n} \qquad (16)$

ou, expressando (15) em função da meia vida

$$\frac{N_{1}}{T_{1}} = \frac{N_{2}}{T_{2}} = \frac{N_{3}}{T_{3}} = \frac{N_{n-1}}{T_{n-1}} = \frac{N_{n}}{T_{n}}$$
(17)

As relações (16) e (17) são aplicadas sempre que um elemento predecessor de meia vida longa origina elementos de meias vidas curtas, desde que a série não tenha sofrido perturbações e perdido nenhum componente no tempo, suficientemente próximo ao restabelecimento do equilíbrio.

Considere-se um elemento de meia vida excessivamente longa (T \approx oo), que produz outro de meia vida curta e admitindo que esse segundo elemento foi totalmente separado de modo que o primeiro se encontra em estado de pureza.

Através da equação (11) já deduzida, temos:

$$Nb = \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a}, No (e^{-\lambda at} - e^{-\lambda bt})$$
(18)

suporido que:

Na = No e<sup>$$-\lambda$$
at</sup> \approx No, pois $\lambda a \approx 0$ e λb - $\lambda a \approx \lambda b$,

obtem-se a equação:

$$Nb = \frac{\lambda a}{\lambda b} \qquad No (1 - e^{-\lambda bt}),$$

$$\lambda b N b = \lambda a N o (1 - e^{-\lambda b t})$$
 (19)

que proporciona a atividade de um elemento em função do tempo e a atividade do elemento predecessor, ou seja, depois de decorridas diversas meias vidas do elemento B (filho), $e^{-\lambda bt}$ será desprezível e a eq.(19) se reduz a:

$$N_{1\lambda_1} = N_{2\lambda_2}$$
 (20)

Portanto se existir uma relação entre uma série de 2 a n elementos, haverá um sistema total de equações (13,a,b,c), para a determinação do número de átomos dos n elementos da série.

O equilíbrio secular é estabelecido em qualquer uma dessas séries, quando um nuclídeo de meia vida longa (pai da série), estiver com a taxa do número de átomos constante, e de todos os elementos da série, em função do tempo. Sendo que se todos os dN/dt aproximam-se de zero, da eq.(20), temos para n nuclídeos de uma série:

$$N_{1\lambda_{1}} = N_{2\lambda_{2}} = N_{3\lambda_{3}} = ... = N_{n\lambda_{n}}$$
 (21)

condição clássica designada como equilíbrio secular, que pode ser representada em têrmos de meia vida como T₁>>T₂, ou através da constante de desintegração, como $\lambda_1 <<\lambda_2$, onde o índice 1 representa o elemento pai da série. Lembrando que para atingir o equilíbrio secular é necessário ter decorrido um tempo bem maior que a meia vida do nuclídeo filho, (t>>T₂).

A atividade total é obtida somando-se a atividade do nuclídeo inicial com a do nuclídeo formado, isto é:

$$A_{T} = \lambda a No + \lambda b Nb,$$

substituindo λ bNb na eq. (10), temos:

$$A_{T} = \lambda a No + \lambda a No (1 - e^{-\lambda b t}),$$

 $A_{r} = 2\lambda_{a}No - \lambda_{a}Noe^{-\lambda_{b}t}$ (22.)

Para efeito ilustrativo, a figura 1, representa um gráfico teórico do sistema de equações envolvidas no equilíbrio secular.



FIGURA 1 - Equilíbrio Secular, adaptado de CHASE ε RABINOWITZ, 1968.

ì

2.5. Equilíbrio transitório e não equilíbrio

Existe ainda um outro tipo de equilíbrio, denominado de equilíbrio transitório, e ocorre sempre que numa série de 2 a n elementos a meia vida do nuclídeo inicial é maior que a do seu predecessor, isto é, $T_1 > T_2$. Segundo CHASE ε RABINOWITZ (1968), a meia vida do elemento pai deve corresponder aproximadamente de um fator de 10 vezes maior do que a meia vida do(s) elemento(s) filho(s), para que assim seja caracterizado.

No equilíbrio transitório, após decorrer um tempo t extremamente longo, o termo $e^{-\lambda bt}$ torna-se desprezível comparado com o têrmo $e^{-\lambda at}$, portanto, $e^{-\lambda bt} \approx 0$. Substituindo $e^{-\lambda bt}$ na eq.(18), tem-se:

$$Nb = \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a} . No e^{-\lambda a t} \approx \frac{\lambda a}{\lambda b - \lambda a} . Na,$$

Ναλα = Νο ζλο - λαλ

$$\frac{Na}{Nb} = \frac{\lambda b - \lambda a}{\lambda a},$$

$$\frac{Na}{\lambda b Nb} = \frac{\lambda b - \lambda a}{\lambda a \lambda b},$$

$$\frac{\lambda a Na}{\lambda b} = \frac{\lambda b - \lambda a}{\lambda b}, \qquad (23)$$

$$\lambda b Nb \qquad \lambda b$$

a eq.(21) em térmos de atividade:

$$\frac{\lambda a N a}{\lambda b N b} = \frac{A a}{A b} ,$$

$$Ab = Aa \cdot \frac{\lambda b}{\lambda b - \lambda a}$$
 (24)

Como ocorre no equilíbrio secular, o equilíbrio transitório é estabelecido quando a razão entre as atividades do nuclídeo pai e filhos decresce função da meia vida do nuclídeo pai da série, ilustrado na figura 2.

ou



FIGURA 2 - Equilíbrio transitório, adaptado de CHASE « RABINOWITZ, 1968.

Em último caso, o equilíbrio não é estabelecido, tendo como consequência de não ocorrer equilíbrio algum, condição que acontece quando a meia vída do nuclídeo pai da série for menor que a meia vida do filho(s) ($T_1 < T_2$), ilustrado na figura 3.



FIGURA 3 - Não há equilíbrio, adaptado de CHASE ε RABINOWITZ, 1968.
2.6. As séries radioativas naturais

As séries radicativas naturais podem ser expressas pelo número de massa de seus constituintes, representados pelas expressões:

> 4n 4n + 2 4n + 3

onde n é um número inteiro e diferente de zero. Essas expressões podem ser usadas para gerar as massas atômicas dos nuclídeos das séries do tório, rádio e actínio, conforme resumo na tabela 1.

TABELA 1 - As séries radioativas naturais

Expressão geradora	Denominação da série	Primeiro elemento da série	Ultimo elemento da série
4n	tório	232 _{Th}	208 _{Pb}
4n+2	urânio	2 3 8 U	200 _{Pb}
4n+3	actínio	295 _U	207 _{Pb}

As séries radioativas naturais do Urânio, Tório e Actínio estão esquematizadas nas figuras 4, 5 e 6, respectivamente:



atômico. O radionuclídeo final da série é o ²⁰⁶Pb estável.

FIGURA 4 - Série do Urânio (4n + 2)



Obs: A representa o número de massa e Z o número atômico. O radionuclídeo final da série é o ²⁰⁸Pb estável.

FIGURA 5 - Série do Tório (4n)



Obs: A representa o número de massa e Z o número atômico. O radionuclídeo final da série é o ²⁰⁷Pb estável.

FIGURA 6 - Série do Actínio (4n + 3)

3. MATERIAIS E MÉTODOS

3.1. Amostragem

O Município de Piracicaba está situado na região central do Estado de São Paulo, conforme mostra a figura 7. Sua sede está a uma latitude de 22° 42'S e longitude de 47° 38' W com uma altitude média de 550 metros (Departamento de Física e Meteorologia-ESALQ-1968). Os grandes grupos de solos do município segundo RANZANI et alii (1966), estão representados no mapa da figura 8.

As tabelas 2 e 3 apresentam as relações das amostras coletadas, e sua caracterização, e o mapa da figura 10, a localização aproximada da coleta. Procurou-se tomar amostras representativas dos grandes uma ocorrem área para melhor grupos que na representatividade do município, sob a orientação do Prof.José Luiz I.Demattê e seus colaboradores do Departamento de Solos. Geologia e Fertilizantes da ESALQ.



FIGURA 7 - Localização do Município de Piracicaba no Estado de São Paulo (RANZANI et alii, 1966).

Amostra	Grande grupo	Área Munic. (%)	Profund. (cm)	Localiz. (fig.10)
02 03 04 05 09 01 11 23 45 07 00 11 12 34 56 78 01 22 22 24 67 0	Latosol ,, ,, Podsólico Hidromórfico Podsólico ,, Latosol Hidromórfico Podsólico ,, Latosol Podsólico ,, Latosol Podsólico ,, Regosolo Mediterrápeo	6,1 6,1 6,1 1,7 0,7 7,3 6,3 5,7 7,2 2,2 2, - - 2,3 - - 2,3 -	60 120 60 60 60 60 60 60 60 60 60 60 60 60 60	F = 09 E = 09 F = 09 F = 09 H = 08 F = 09 D = 08 D = 08 D = 08 D = 08 D = 09 I = 07 G =
41 42 43 44 45 46	Latosol -perf.	i l	superf. 20 40 80 100	F - 09

TABELA 2 - Solos do Município de Piracicaba.

.

.



FIGURA 8 - Grandes Grupos de Solos do Município de Piracicaba (RANZANI et alii, 1966). Na maioria das vezes foram coletadas amostras nos mesmos locais já utilizados por outros pesquisadores em trabalhos científicos na ESALQ, afim de se ter maior número de informações possíveis.

TABELA 3 - Rochas do Município de Piracicaba.

Amostra	Descrição	Localiz.
51	Rocha alterada-série L.Queiróz/ESALQ	F - 08
52	Rocha alterada-série L.Queiróz/ESALQ	F - 08
53	Rocha sedimentar-folhelho/Artemis	D - 07 ·
54	Rocha sedimentar-arenito/Cruz Alta	I - 06
55	Rocha sedimentar-calcário/Bairrinho	J - 07
56	Rocha ignea-basalto/ESALQ	F - 08
57	Rocha sedimentar-folhelho/Rua do Porto	F - 08
58	Rocha sedimentar-folhelho/Rua do Porto	F - 02

Para efeito comparativo, foram analisados 10 amostras de solos superficiais da região canavierra do Estado de São Paulo (tabela 4), e 4 amostras de solo da região urbana da cidade de Poços de Caldas/MG, (tabela 5). TABELA 4 - Descrição das amostras de solos da região canavieira do Estado de São Paulo (Fernandes,1988).

Amostra	Solo	Localização		
1 01	CB	Faz.Matão-Usina Sta Cruz		
102	PVA	Faz.M.Alegre-Usina Sta Cruz		
103	PVE	Faz.Barnabé-Usina Porto Feliz		
104	LVA	Faz.B.Vista-Usina Porto Feliz		
105	LVA	Faz.SobradUsina Porto Feliz		
106	LR	Faz.S.Luiz-Usina S.Luiz		
107	LVE	Faz.S.Luiz-Usina S.Luiz		
108	LVA	Faz.Mato Alto-Usina S.Luiz		
109	TRE	Faz.Lavrinha-Usina S.Luiz		
110	PVA	Faz.Barnabé-Usina Porto Feliz		

TABELA 5 - Amostras de solo da zona urbana de Poços de Caldas/MG.

Amostra	Localização (Logradouro)	Profundidade (cm)
501	Cascata das Antas	50
502	Jardim Japones	40
503	Estrada das Antas	30
504	Aeroporto	70

3.2. Preparo de amostras

As amostras de solos e rochas foram secas ao ar por 48 horas, pulverizadas em almofariz de porcelana até atingirem uma granulometria de 16 mesh (1,0 mm). Depois, foram homogeneizadas e secas em estufas a uma temperatura de 100 \pm 5 °C por 24 horas.

A seguir, foram acondicionadas em recipientes de contagem, cilindros de plástico com 9,88 cm de diâmetro interno por 3,93 cm de altura, portanto com volume de 301,30 cm³. A compactação foi natural, apenas para completar o volume, com a massa variável de 300 a 500 gramas. Teve-se o cuidado de conservar a geometria de contagem ideal e idêntica à utilizada com os padrões para determinação da curva de eficiência.

serem contadas, Antes de as amostras ficaram em repouso, hermeticamente lacradas por um período mínimo de trinta dias, a fim de atingirem uma condição equilíbrio secular, onde diversos próxima ao experimentos preeliminares foram efetuados р os recepientes que não estavam bem vedados, indicavam que não havia equilíbrio secular entre os elementos das séries naturais pois havia escape de radônio, conforme recomendação de MISHRA & SADASIVAN (1971).

33

A quantificação foi feita através de análises do espectro gama emitido pelos componentes de cada série, supondo-se que estes se encontravam em equilíbrio.

A análise espectrométrica foi feita com um detector semicondutor coaxial de germânio hiperpuro de 65 cm³ (EG e ORTEC, modelo 10195), acoplado a um analisador de pulsos de 4096 canais (ORTEC, modelo 572).

O tempo de contagem mínimo para cada amostra foi de 15 horas. Após isto, os dados foram transferidos para um microcomputador para interpretação do espectro e quantificação dos resultados (NASCIMENTO et alii, 1988). Na maioria dos casos, a identificação e quantificação dos fotopicos foi feita manualmente, direto do analisador multicanal.

3.4. Escolha dos fotopicos

Cada série é caracterizada pelo espectro gama de seus componentes. Portanto, a série do Urànio é facilmente caracterizada pelos fotopicos do ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi.

34

A série do Tório, é bem caracterizada pelos fotopicos do ²¹²Pb,²¹²Bi,²⁰⁸Tl e ²²⁸Ac. Como se admite o equilíbrio secular, determinando-se a atividade de um componente, sabe-se a atividade de todos da série.

O ²²⁶Ra embora não seja o primeiro da série $(^{238}U$ é o pai da série) é tradicionalmente adotado como referencial. O fotopico do ²²⁶Ra em 186,1 KeV, não é usado para cálculo, devido a interferência do pico 185,74 KeV do ²³⁵U da série do actínio (BONOTTO ε HELENE,1978).

Para determinação da atividade das séries do ²²⁶Ra e do ²³²Th e outros radionuclídeos, foram contados os fotopicos relacionados na tabela 6. TABELA 6 - Fotopicos detectados e computados como rotina de trabalho, pertencentes as séries do Urânio, Tório, Actínio, radiação de fundo (BG) e outros radionuclídeos. Energia e intensidade dos fotopicos segundo GENERAL nuclear data references.

Energia (K eV)	Intensidade (%)	Radio- Nuclíd e o	Série	BG (cph)
295,09 351,87 609,31 1120,27 238,58 338,42 583,02 727,25 911,16 969,06 143,78 154,18 163,38	19,2 37,0 46,1 15,0 43,6 12,4 86,0 6,6 29,0 17,0 10,5 5,6 4,7	214Pb (*) 214Pb (*) 214Bi (*) 214Bi 212Pb 228Ac (*) 208Tl (*) 212Bi 228Ac (*) 228Ac (*) 228Ac 235U 223Ra 235U	Urânio ,, ,, Tório ,, ,, ,, Actínio ,,	2,2838 6,6064 7,8998 3,6529 9,6984 2,0966 5,9512 1,4962 5,9994 4,2725 - -
± 186 661,64 1460,64	- 85,1 10,5	137 40 _K	Ra + Ac _ -	- - 26,0489

Obs: Os fotopicos assinalados (*) foram aqueles utilizados para o cálculo da atividade no presente trabalho.

3.5. Radiação de fundo

A radiação de fundo foi medida por um tempo de aproximadamente 40 horas em quatro oportunidades. A origem desta é devida principalmente ao material da blindagem e componentes da geometria e da radioatividade natural do ar, paredes, subsolo, etc. Esses materiais contém elementos das séries do Actínio, Urânio e Tório além do Potássio-40.

É portanto muito importante a quantificação prévia da radiação de fundo, nos fotopicos escolhidos.

3.6 Eficiência de detecção

Para se calcular a curva de eficiência de detecção foi utilizada uma amostra padrão de solo (Soil-6) com valor certificado de 2160 pCi/kg e 1450 pCi/kg em ²²⁶Ra e ¹³⁷Cs, respectivamente, em 30/01/93. Fornecida pela Agência Internacional de Energia Atômica, Viena, usando-se o mesmo recipiente de amostras definido no item 3.2.

A eficiência de detecção depende da energia da radiação gama incidente sobre o detector e variáveis como a disposição geométrica da amostra, absorção, auto-absorção e dispersão da radiação.

Eficiência de detecção vem a ser a razão entre o número de eventos detectados pelo número de fótons emitidos.

É definida portanto, como a razão entre a taxa de contagens (cps) e a taxa de desintegrações (dps):

ou seja,

$$\varepsilon f(\%) = \frac{CO/TC - BG}{f \% A}$$

onde: CO = número de eventos detectados, contagens TC = tempo de contagem (s) BG = radiação de fundo ou background (cps) f % = porcentagem de raios gama emitidos pelos radionuclídeos

A = atividade conhecida do padrão (Bq/kg)

3.7 Cálculo da atividade

Uma vez calculada a eficiência de detecção (ε f(%)) e subtraída a radiação de fundo da taxa de contagens (C em cps) e sendo (f(%)) a intensidade de raios gama emitidos pelos radionuclídeos, a atividade (A) foi calculada pela equação:

Sendo m a massa em kg da amostra, pode-se exprimir o resultado em termos de atividade por unidade de massa, ou seja, atividade específica (GUIMARÃES, 1988), em Bq.kg⁻¹:

As =
$$\frac{A}{m}$$

4. RESULTADOS E DI SCUSSÃO

4.1. Curva de eficiência de detecção

Para a região do espectro compreendida entre 120 KeV e 1700 KeV, foi estabelecida uma curva logarítmica, obtida através análise de regressão linear com o seguinte resultado:

> ef (%) = $e^{(5,57615 - 0,97261 \ln ENERGIA)}$ r = 0,99691

Essa curva foi determinada pelos fotopicos de energia 295.09 keV, 351.87 keV (214 Pb) e 609.31 keV, 1120.27 keV,(214 Bi) e 661.64 keV (137 Cs), e pode ser visualizada na figura (9).



FIGURA 9. Curva de eficiência de detecção para os raios gama para a geometria utilizada.

 Atividades específicas dos solos do Município de Piracicaba.

Os resultados em atividade específica para o 226 Ra e 232 Th, respectivamente, os representantes da série do RÁDIO e da série do TÓRIO, bem como o 40 K, se encontram na tabela 7. Na quarta coluna da referida tabela estão os resultados da razão Th/Ra, ou seja, o quociente entre os valores da 3^a coluna (232 Th) pelo da 2^a coluna (226 Ra). Este quociente é um fator bastante importante para a caracterização da origem dos solos, bem como de uma possível anomalia (contaminação, desequilíbrio, etc.).

As amostras de 02 a 29 são aquelas que representam o Município de Piracicaba (vide detalhes na tabela 2) e os resultados de atividade específica foram resumidos na tabela 8. TABELA 7 - Atividades dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K e desvio padrão em amostras de solos naturais da região de Piracicaba.

Atividade dos Radionuclídeos (Bq.kg⁻¹) e razão (Th/Ra)

Amostras	226 Ra	232 _{Th}	(Th/Ra)	40 _K	
02	39,2 ± 2,03	45,1 ± 1,01	1,15	13,6	
03	16,7 ± 1,25	28,8 ± 3,70	1,72	242,1	
04	40,0 ± 3,24	44,9 ± 0,69	1,13	10,9	
05	18,2 ± 1,53	26,2 ± 0,62	1,44	172,3	
08	12,2 ± 1,27	17,7 ± 2,53	1,46	-	
09	13,2 ± 1,01	17,6 ± 0,36	1,33	10,1	
10	18,4 ± 0,81	28,8 ± 0,66	1,56	87,0	
11	31,0 ± 0,67	55,1 ± 1,95	1,78	845,1	
12	70,0 ± 2,76	117,6 ± 4,02	1,76	55,4	
13	$12,3 \pm 0,51$	15,5 ± 0,95	1,26	4,7	
14	12,1 ± 1,16	14,3 ± 0,99	1,20	164,5	
15	29,9 ± 1,83	$40,6 \pm 1,11$	1,36	120,9	
16	11,4 ± 0,45	$13,9 \pm 1,14$	1,22	153,9	
17	42,9 ± 2,38	53,3 ± 4,40	1,24	-	
18	46,7 ± 1,61	51,7 ± 2,39	1,11	24,6	
20	21,3 ± 0,91	56,6 ± 1,81	2,67	579,0	
21	21,7 ± 1,30	68,5 ± 1,75	3,17	21,0	
22	$18,5 \pm 0,40$	27,4 ± 0,07	1,48	132,9	
23	19,0 ± 1,60	17,3 ± 0,60	0,92	145,1	
24	$11,4 \pm 0,07$	13,6 ± 1,03	1,19	388,3	
26	$23,6 \pm 1,31$	22,1 ± 0,52	0,94	194,0	
27	4,1 ± 0,55	8,5 ± 0,57	2,11		
29	37,2 ± 1,52	$63,6 \pm 2,17$	1,71	481,8	

A figura 10 ilustra o mapa do Município de Piracicaba, indicando os locais de coleta das amostras de solos e rochas, cujos resultados se encontram nas tabelas 7, 10 e 11.

TABELA 8 - Resumo das atividades específicas para o ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K em Bq.kg⁻¹, encontradas em amostras do Município de Piracicaba.

VALOR	226 _{Ra}	232 _{Th}	(Th/Ra)	40 _K
	······································			
MAXIMO	70,0	117,6	3,17	845,1
MÍ NI MO	4,1	8,5	0,92	> 0
MÉDI A	24,3	36,9	1,52	167,
~ &	15,4	25,3	·	216,4
cvcఌ **	63	68		129,0

* σ : desvio padrão da média
**
CV : coeficiente de variação (%)

As médias e respectivos desvios padrão, indicam uma certa uniformidade nos teores de ²²⁶Ra e ²³²Th,com algumas exceções. como por exemplo a amostra 27, um regosol, com valores extremamente baixos, como era de se esperar, e da amostra 12, um latosol, com valores bem elevados, o que pede novos estudos.

Se agrupados segundo os grandes grupos, o resultado é aquele mostrado na tabela 9.

TABELA 9 - Resultados das atividades referentes aos radionuclídeos ²²⁶Ra e ²³²Th e razão (Th/Ra) dos grandes grupos de solos do Município de Piracicaba.

GRANDE GRUPO	AREA TOTAL C %)	226 _{Ra}	232 Th	(Th/Ra)
PODSÖLI CO	44,1	20,6	27,5	1,33
LATOSOL	24,2	35,0	55,0	1,57
MEDI TERRÂNI CO	0,4	37,2	63,6	1,71
REGOSOLO	6,1	4,1	8,5	2,11
HIDROMÓRFICO	1,0	12,8	16,6	1,30

Não apenas os valores de atividade média por grande grupo mas também os valores da razão (Th/Ra), mostraram as diferenças de origem desses solos, principalmente o regosolo. Esses números merecem um estudo à parte, devendo ser comparados com dados geológicos.

Os valores de 40 K são extremamente variáveis, indo desde praticamente zero, ou seja, no limite de detecção, até próximo de 1000 Bq.kg⁻¹. Isso se deve a mobilidade do potássio no solo, sua utilização pelas plantas e também pela contaminação com fertilizantes agrícolas. O desvio padrão apresenta um valor muito superior à média, da ordem de 129%

O ¹³⁷Cs não foi encontrado em quantidades significativas nas amostras do Município de Piracicaba, pois no presente estudo foram coletadas em geral a uma profundidade de 60 cm. Entretanto, pode ser detectada a sua presença em algumas amostras superficiais, como era de se esperar e conforme foi encontrado por GUIMARÃES (1988).

4.3. PERFIL TÍPICO

Para se estudar a variabilidade com a profundidade, foi escolhido como perfil típico a série Luiz de Queiróz (TRED C amostras numeradas de 41 a 46). Os resultados estão na tabela 10.



TABELA 10 - Atividade específica para os radionuclídeos 226 Ra, 232 Th e 40 K encontrados no perfil de solo da série Luiz de Queiróz (TRE)

Amostra	prof. (cm)	22 <i>6</i> Ra	232 _{Th}	(Th/Ra)	40 K
41	sup.	43,2±1,80	30,0±0,76	0,69	12,34
42	20	42,7±0,31	30,3±3,88	0,71	25,19
43	40	51,2±2,75	39,5±1,17	0,77	12,34
44	60	51,1±2,41	37,7±0,34	0,74	> 0
45	80	51,1±1,85	36,7±1,51	0,72	8,70
46	100	52,2±2,30	39,5±0,85	0,76	21,81

Atividade dos Radionuclídeos (Bq.kg⁻¹)

Os resultados mostram uma pequena perturbação nas camadas superficiais, devido a vegetação, intemperismo e teor de matéria orgânica, etc, e valores praticamente constantes abaixo de 30 cm, tanto para o 226 Ra como o 292 Th . Surpreendentemente, os valores de atividade do 226 Ra estão bem acima da média esperada, comparativamente aos valores de 292 Th. Pode-se dizer que se trata de um perfil homogèneo até 100 cm de profundidade. 4.4. Rochas do Município de Piracicaba

A tabela 11 apresenta os resultados obtidos com as amostras de número 51 a 58, descritas na tabela 3.

As rochas alteradas que originam o "Luiz de Queiroz", assim como o basalto, apresentam baixos valores para ²²⁶Ra e ²³²Th (amostras 51,52 e 56), com uma razão de 1,5 aproximadamente. Já as sedimentares, folhelho e arenito (amostras 53,54, 57 e 58), tem teores 6 a 7 vezes maiores com uma razão em torno de 1,2. O resultado mais interessante é o do calcário (amostra 55), com teor bem baixo de ²³²Th e relativamente alto de ²²⁶Ra, dando uma razão Th/Ra = 0,18. O solo coletado no mesmo local (amostra 26) apresenta respectivamente 23,6 - 22,1 e 0,94, mostrando que não tem a mesma origem.

49

TABELA 11[.] - Atividade dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K em Bq.kg⁻¹ e razão entre (Th/Ra) em rochas do Município de Piracicaba.

Amostra	220 Ra	292 _{Th}	(Th/Ra)	40 K
51 52	9,4 ± 0,31 8,7 ± 0,37	16,5 ± 0,80 14,8 ± 1,19	1,42 1,70	503,4 454,5
53 54 55	30,8 ± 1,24 14,6 ± 0,50 42,6 ± 2,01	$41,3 \pm 1,94$ $17,8 \pm 0,53$ 77 ± 176	1,35 1,22	713,6 634,0 87 1
56 56 57 58	$42,6 \pm 2,01$ 7,6 ± 0,34 44,6 ± 1,39 66,4 ± 2,06	$12,0 \pm 1,70$ $12,0 \pm 1,77$ $56,7 \pm 0,68$ $64,9 \pm 1,88$	2,12 1,27 0,97	356,1 160,5 346,9

4.5. Solos agrícolas da região canavieira do Estado de São Paulo

Os resultados de atividade dos solos agrícolas descritos na tabela 4, são mostrados na tabela 12. São solos superficiais, modificados pela atividade agrícola e contaminados com fertilizantes e defensivos agrícolas, por isso mesmo estes dados são apresentados apenas para efeito comparativo. É sabido que certos fertilizantes são ricos em elementos radioativos das séries do Rádio e Tório, através de sua origem de depósitos de fosfatos naturais (PESSENDA et alii, 1988). Também, é uma prática corrente na agricultura canavieira a adição de vinhaça como fertilizante, propiciando assim, mais uma razão para a variabilidade nos teores de 40 K.

TABELA 12 - Atividades dos radionuclídeos ²²⁶Ra,²³²Th e ⁴⁰K em Bq.kg⁻¹ e razão (Th/Ra) para amostras superficiais de solos da região canavieira do Estado de São Paulo.

			-	4				
Atividade	dos	Radionuclídeos	(Bq.kg	ר ב	e	razão	CTh/Ra	.С

Amostras	226 _{Ra}	232 _{Th}	(Th/Ra)	40 _K
	,,,,,,,			
101	31,9 ± 2,26	33,6 ± 0,88	1,06	539,7
102	18,9 ± 1,50	17,9 ± 1,85	0,96	28,9
103	56,5 ± 2,91	69,3 ± 2,01	1,23	80,0
104	28,3 ± 1,55	52,9 ± 1,91	1,87	
105	19,7 ± 0,10	21,2 ± 1,24	1,07	109,3
106	$22,6 \pm 1,46$	33,3 ± 1,56	1,48	12,1
107	45,5 ± 2,30	63,7 ± 3,07	1,40	77,4
108	10,1 ± 0,64	17,9 ± 0,12	1,78	6,6
109	36,9 ± 0,19	38,1 ± 1,92	1,02	9,0
110	46,7 ± 1,68	50, <u>6</u> ± 1,83	1,09	73,0

4.6. Solos de Poços de Caldas, MG

Também para fins comparativos foram analisadas 4 amostras de solos da zona urbana de Poços de Caldas/MG. Foi escolhida a zona urbana exatamente por se tratar do local onde vive cerca de uma centena de milhar de pessoas. Não teria sentido, para uma comparação, coletar amostras de locais próximos à mina do Morro do Chapéu, explorados pela Nuclebrás. Mesmo assim, devido a proximidade, cerca de 15 km, os dados mostraram a riqueza desses solos em Rádio, Tório e Potássio. A atividade específica chega a ser 10 vezes superior à dos solos do Município de Piracicaba (vide a tabela 13), no caso do Rádio e Tório.

TABELA 13 - Atividade específica dos radionuclídeos 226 Ra, 232 Th e 40 K em Bq.kg $^{-1}$ e a razão entre (Th/Ra) em amostras de solo localizadas na zona urbana de Poços de Caldas, MG.

Atividade dos Radionuclídeos (Bq.kg ⁻¹) e razão (Th/Ra)				
Amostra	22 <i>6</i> Ra	232 <u>.</u> Th	(Th/Ra)	40 _K
501 502 503 504	245,8 ± 13,4 202,7 ± 6,7 170,4 ± 5,0 286,5 ± 14,5	213,8 ± 5,02 354,0 ± 6,51 265,9 ± 3,48 268,5 ± 1,08	0,87 1,75 1,56 0,94	802,9 1053,0 69,1 260,3

52

4.7. Níveis de radioatividade natural em solos encontrados em algumas regiões da Terra.

Segundo MYRICK et alii (1983), a média dos Estados Unidos (33 estados e 256 pontos de coleta), está em 40,7 Bq.kg⁻¹ para o ²²⁶Ra e 36,3 Bq.kg⁻¹ para o ²³²Th . Esse levantamento, embora com uma amostragem não satisfatória, reflete a ordem de grandeza da radioatividade natural em solos norte americanos. As médias encontradas neste trabalho (médias não ponderadas), ou seja, 24,3 Bq.kg⁻¹ para o ²²⁶Ra e 36,9 Bq.kg⁻¹ para o ²³²Th, representam o Município de Piracicaba.

De LAUNE et alii (1986) determinou a atividade média desses mesmos radionuclídeos em sedimentos e solos cultivados e não cultivados no estado de Louisiana, EUA. Em solos agrícolas com forte adubação fosfatada e práticas intensas, constatou-se a condição de não equilíbrio, para as séries do Rádio e Tório, conforme pode ser observado na tabela 14.

Na série do Rádio, os nuclídeos ²³⁴Th, ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi deveriam apresentar a mesma atividade, respeitadas as variações devidas ao erro experimental, numa condição de equilíbrio. Pela mesma razão os componentes da série do Tório,²²⁸Ac, ²⁰⁸Tl, ²¹²Pb e ²¹²Bi apresentam praticamente o mesmo valor, porém, bem abaixo da atividade detectada do ²²⁸Th, mostrando a situação de não equilíbrio na série. Tal análise foi ' possível graças ao uso também de espectrometria alfa.

TABELA 14 - Atividade média e limites da concentração dos radionuclídeos da série ²²⁶Ra e ²³²Th encontradas em solos agrícolas CDe LAUNE et alli, 1986).

radionuclídeo	limit	esC	Bq.kg ⁻¹)	média(Bq.kg ⁻¹)
	<u> </u>		÷	
234 Th	22	-	106	34
220 Ra	28	-	103	64
²¹⁴ Pb	5	-	24	14
²¹⁴ Bi	12	-	39	30
			,	
228 _{Th}	49	-	161	91
228 AC	11	-	48	36
208 _{Tl}	12	-	54	30
²¹² Pb	13	-	41	33
²¹² Bi	14	-	93	38

MURRAY & AITKEN (1988) apresentam um resumo de análises realizadas por vários pesquisadores em solos de diversas partes do mundo. A tabela 15 é uma adaptação da tabela 8 do referido trabalho, incluindo-se dados obtidos por outros autores e do presente trabalho.

TABELA 15 - Atividade dos radionuclídeos ²²³Ra, ²³²Th e ⁴⁰K em Bq.kg⁻¹ de solos encontrados em diversas partes da Terra.

Local	226 Ra	232 _{Th}	(Th/Ra)	40 K	Ref.
PORTUGAL	80,0	48,5	0,61	466	1
ZAI RE	67,0	55,5	0,83	106	1
EGI TO	11,0	24,4	2,18	311	1
INGLATERRA	29,0	36,6	1,26	696	1
FRANÇA	44,0	27,4	0,62	618	1
ÍNDIA	51,0	81,4	1,60	947	1
IRÃ	19,0	25,5	1,34	503	1
ITÁLIA	63,0	77,0	1,22	884	1
AUSTRÁLI A	16,0	23,3	1,46	274	1
PERU	45,0	34,4	0,76	758	1
FORMOSA	30,0	44,0	1,47	462	2
E. UNI DOS	40,7	36,3	0,89	-	3
MÉDIA MUNDIAL	25,0	25,0	1,00	370	4
PIRACICABA	24,3	36,9	1,52	168	5

Obs:	REF.1 :	MURRAY & AITKEN (1988).
	REF.2 :	LIN et alii (1987).
	REF.3 :	MYRIC et alii (1983).
	REF.4 :	UN Sc. COMMITTE (1987).
	REF.5 :	PRESENTE TRÀBALHO.

As rochas ígneas e sedimentares estudadas por LIN et alii (1987) em Formosa, apresentam teores não muito diferentes daqueles encontrados no presente trabalho, conforme pode ser visualizado na tabela 16.

TABELA 16 - Atividade dos radionuclídeos ²²⁶Ra e ²³²Th em Bq.kg⁻¹ de rochas ígneas e sedimentares.

Rocha		220 _{Ra}	292 _{Th}	
Ígnea	- diorito	15 / 23	17 / 32	
	- basalto	16 / 12 / 7,6	20 / 12 / 12	
	- dunrito	1,3 / 0,4	0,4 / 24	
Sediment.	- calcário	17 / 43 / 43	5,1 / 7 / 7,7	
	- arenito	19 / 19 / 15	30 / 11 / 18	
	- folhelho	32 / 44 / 47	51 / 44 / 54	

Obs: O primeiro valor refere-se aos dados encontrados por LIN et alii (1987); o segundo é a média mundial¹, e o terceiro são os resultados encontrados no presente trabalho.

¹United Nations Scientific Committee on the Effects of Ionizing Radiation, 1977. Sources and Effects of Ionizing Radiation, Report to the General Assembly, New York, citado por LIN et alii, 1987.

5. CONCLUSÕES

Devido a ocorrência de diversos Grandes Grupos de solos na região estudada, bem como rochas de diferentes origens, as amostras analisadas apresentaram uma grande variabilidade em radioatividade natural. 0s menores valores de radicatividade para a série natural do Rádio. foram encontrados no regosolo, 4,1 Bg.Kg⁻¹ e no basalto 7,6 Bq.kg⁻¹, enquanto que os mais elevados, foram 70,0 Bq.Kg⁻¹ para o latosol e 66,4 Bq.Kg⁻¹ para o folhelho. Para a série natural do Tório , os menores valores de atividade, foram 8,5 Bq.Kg⁻¹ tambem para o regosolo e 7,7 Bg.Kg⁻¹ para o calcário, os maiores valores foram 117,6 Bg.Kg⁻¹para o latosol e 64,9 Bg.Kg⁻¹ para o folhelho. Os Grandes Grupos podsólico e latosol ocorrem com maior frequencia no município, representando cerca de 70 % da área. O mediterrânico, que apresentou a maior taxa de radioatividade, e o regosolo, a menor taxa de radioatividade, ocupam uma área bem pequena. Por isso a media ponderada do Município de Piracicaba, SP é estimada em 24,1 Bq.Kg⁻¹ para o ²²⁶Ra e 34,8 Bq.Kg⁻¹ para o ²⁹²Th, não muito diferente da média mundial estimada pelo UN Sc.COMMITE (1987), isto é, 25 Bq.Kg⁻¹ e 25 Bq.Kg⁻¹, respectivamente. A razão Th/Ra igual a 1,44 para Piracicaba indica a predominância de radionuclídeos da série natural do Tório nesta região.
REFERENCIAS BIBLIOGRAFICAS

- BONOTTO, D.M. & HELENE, O.A.M. Espectroscopia gama de alta resolução aplicada a radioatividade natural. Supl. Ciência e Cultura 30 (7), 1978, p.385.
- CARVALHO, B.A. Ecologia e poluicao. Rio de Janeiro, ed. Freitas Bastos, 1975. 177p.
- CHASE, D. & RABINOWITZ, J.L. Principles of Radioisotope Methodology. ed. Burgess Publishing Company, 1968. 770p.
- DeLAUNE, R.D.; JONES, G.L. & SMITH, C.J. Radionuclide concentrations in Louisiana soils and sediments. Healt Phys. 44 : 469-477, 1986.
- DEPTO DE FÍSICA E METEOROLOGIA. Análise dos dados meteorológicos de Piracicaba, SP. Bol. Tec. Científico nº 32, ESALQ/USP, PIRACICABA, 1968, 25p.
- EVANS, R.D. The atomic nucleus. New York, McGraw-Hill, 1972, 972p.

- FERNANDES, E.A.N. Avaliação do teor de solo em carregamentos de cana-de-açucar por radioatividade induzida. Piracicaba, 1988. 112 p. (Doutorado - Escola Superior de Agricultura "Luiz de Queiroz"/USP).
- FERRAZ, E.S.B. A contaminação do Ambiente. *Ciencia Hoje*, suplemento Auto de Goiânia, vol.7, **40**: 29-32, 1988.
- GENERAL nuclear data references. In: WEAST, R.C., ed. Handbook of Chemistry and Physics. 66.ed. Boca Ratan, CRC Press, 1986. p.234-454.
- GOMES, R.A. Radiação de fundo. *Ciencia Hoje*, suplemento Autos de Goiânia, vol.7, **40**: 36, 1988.
- GUIMARÃES, M.F. Césio-137 da precipitação radioativa ("fallout") no estudo da erosão e sedimentação de solo. Piracicaba, 1988.136p. (Doutorado - Escola Superior de Agronomía "Luiz de Queiroz"/USP).
- KAPLAN, I. Nuclear pysics. 2 ed. Reading, Addison-Wesley, 1972, 455p.
- LIN, Y.M.; LIN, P.H.; CHEN, C.J. ε HUAN, C.C. Measurements of terrestrial γ radiation in Taiwan, Republic of China. Health Phys. 52 : 805-811, 1987.

- MISHRA, U.C. & SADASIVAN, S. Gamma spectrometrya measurement of soil radioactivity. Int.J. Applied Radiation and Isotopes, 22: 256-257, 1971.
- MURRAY, A.S. & AITKEN, M.J. Analysis of Low-level natural radioactivity in small mineral samples for use in thermoluminescence dating, using high-resolution gamma spectrometry. Appl.Radiat.Isot. 39(2): 145-158, 1988.
- MYRICK, T.E., BERVEN, B.A. & HAYWOOD, F.F. Determination of concentrations of selected radionuclides in surface soil in the U.S. Health Phys. 45 : 631-642, 1983.
- NASCIMENTO FILHO, V.F.; MARQUES, D.S.; FERNANDES, E.A.N.; PESSENDA, L.C.R. & FERRAZ & E.S.B. Programa em BASIC para microcomputador da linha Apple para interpretação de espectros de pulsos de raios gama em sistema detector de alta resolução. IN : CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 2, Rio de Janeiro, 198. Anais. Rio de Janeiro, Associação Brasileira de Energia Nuclear, 1988. V.3, p. 393-402.
- OKUNO, E. Radiação ionizante. *Ciencia Hoje*, suplemento Autos de Goiânia,vol.7, **40**: 20-21, 1988.

- PENNA-FRANCA, E. Radioatividade na dieta dos habitantes das regiões brasileiras de elevada radiação natural. Rio de Janeiro, 1968.163p. (Doutorado - Universidade * Federal do Rio de Janeiro).
- PESSENDA, L.C.R.; NASCIMENTO FILHO, V.F.; De NADAI,E.A. & FERRAZ, E.S.B. Determinação de Ra-226 e Th-232 em amostras de fosfatos naturais, gessos industriais e solos superficiais por espectrometria gama. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 2, Rio de Janeiro, 1988. 10p.
- RANZANI, G.; FREIRE, O. & KINJO, T. Carta de solos do Município de Piracicaba. ESALQ/USP,1966. 85p.
- ROESSLER, C.E.; ROESSLER, G.S. & BOLCH, W.E. Indoor Radon progeny exposure in the Florida phosphate minining region. Health Phys. 45 : 389-396, 1983.
- STEIN, J. Isotopos raioativos. 1.ed. Rio de Janeiro, ed.Alhambra, Madri; 1973. 229p.
- TAUHATA, L. ≠ ALMEIDA, E.S. Usos e cuidados. In: ENERGIA NUCLEAR E SUAS APLICAÇÕES. Comissão Nacional de Energia Nuclear-CNEN, 1984, vol.IV, p.1-81.

62

VASCONCELOS, L. M. H.; AMARAL, E. C. S.; VIANNA, M. E. & PENNA FRANCA, E. Uptake of ²²⁶Ra and ²¹⁰Pb by food crops cultivated in a region of high natural radioactivity in Brazil. J. Env. Radioactivity, vol. 5 : 287-302, 1987.

.

WILSON, J.W. Solar radiation monitoring for high altitude aircraft. Health Phys. 50 : 607-617, 1981.