AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**AVALIAÇÃO DOS TEORES DE U, Th, ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb E
OUTROS ELEMENTOS DE INTERESSE PRESENTES EM COGUMELOS
EM UMA REGIÃO DE ELEVADA RADIOATIVIDADE NATURAL NO BRASIL**

MYCHELLE MUNYCK LINHARES ROSA

**Dissertação apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Mestre em Ciências na Área de Tecnologia
Nuclear – Aplicações**

**Orientador (a):
Prof. Dra. Vera Akiko Maihara**

**SÃO PAULO
2012**

Autarquia Associada à Universidade de São Paulo

**AVALIAÇÃO DOS TEORES DE U, Th, ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb E
OUTROS ELEMENTOS DE INTERESSE PRESENTES EM
COGUMELOS EM UMA REGIÃO DE ELEVADA
RADIOATIVIDADE NATURAL NO BRASIL**

Dissertação apresentada como parte
dos requisitos para obtenção do Grau
de Mestre em Ciências na Área de
Tecnologia Nuclear - Aplicações.

Orientadora:

Dra. Vera Akiko Maihara

SÃO PAULO

-2012-

À minha família,
pois é a base de tudo.

AGRADECIMENTOS

Primeiramente a Deus, por estar presente a cada minuto em minha vida e proporcionar força para enfrentar os obstáculos encontrados.

Aos meus pais, Dito e Zetinha, e à minha irmã Luciene, por todo apoio, amparo, palavras de conforto e direcionamento, pela ajuda nas coletas, por acreditarem em meu potencial e principalmente por me encorajarem a chegar até o final.

À Dra. Vera Akiko Maihara, pela orientação, oportunidade, confiança, incentivo e amizade.

Aos meus amigos e praticamente pais “adotivos” Maria Helena Tirollo Taddei e José Fernando de Aguiar Carrazedo Taddei, por toda ajuda, paciência, esclarecimentos, orientações, oportunidades, carinho e atenção.

Aos meus tios, Romenil e Marcela, e primos, Bruno e Thalita, por me hospedarem e todo cuidado que sempre tiveram comigo.

À grande amiga Bianca, por toda atenção, companheirismo, descontrações e principalmente amizade.

Ao meu irmão André, cunhada Dijanni e sobrinha Alícia, que sempre torceram pela conclusão do trabalho.

Aos funcionários e amigos da CNEN/LAPOC, por todo carinho, apoio, ajuda em análises, amostragens e fotos: Adir, Armando, Celso, Cláudio, Dinarte, Eder, Edvaldo, Edna, Élis, Eusínio, Fabiana, Fernanda, Fernando, Giovane, Héber, José Flávio, Luciano, Luíza Mara, Marcelo, Marco Antônio, Maria José, Maria Rêgo, Marcos Nascimento, Nivaldo, Pedrão, Quinelato, Rita, Sandra, Sérgio Bellini, Tânia e Wilsinho.

Aos amigos Daniele, Káthia, Maria Cristina, Priscila, Rita, Roberto, Thalita e Vinícius por todo carinho, conversas, descontrações, estudos e paciência.

Aos funcionários da CNEN/IPEN do Centro de Reator de Pesquisas Divisão da Radioquímica: Ana Maria, Casimiro, Débora, Edson Alves, Edson Moreira, Fred, Guilherme, Marina, Mitiko, Paulo, Regina e Renato.

Aos amigos da CNEN/IPEN da Gerência de Rejeitos Radioativos: Ademar, Cláudio, Daiane, Eduardo (“mágico” das formatações), Eliana, Ieda, Hissae, Josenilson, Júlio, Leandro, Marcos, Maria Eugênia, Patrícia, Rafael, Roberto Vicente, Robson, Rosana, Solange e Vera.

À todos amigos presentes na minha vida em especial Alessandro, Cícero, Clayton, Fabiana, Géslica, Ingrid, Júlia, Maria Célia, Mariane, Rafaella (“caçadora” de cogumelos), Renata, Tarcísio e Thaís.

E a todos que de alguma forma contribuíram para execução deste trabalho.

“Não deixe o barulho da opinião dos outros abafar sua voz interior. E mais importante, tenha a coragem de seguir seu coração e sua intuição. Eles de alguma forma já sabem o que você realmente quer se tornar. Tudo o mais é secundário.”

Steve Jobs

AVALIAÇÃO DOS TEORES DE U, Th, ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb E OUTROS ELEMENTOS DE INTERESSE PRESENTES EM COGUMELOS EM UMA REGIÃO DE ELEVADA RADIOATIVIDADE NATURAL NO BRASIL

Mychelle Munyck Linhares Rosa

Resumo

Cogumelos são espécies de fungos que têm a capacidade de reter radionuclídeos e elementos estáveis, importantes do ponto de vista toxicológico e radiológico do meio ambiente. Estudos têm demonstrado que cogumelos podem ser utilizados como bioacumuladores na monitoração e na avaliação de contaminação e qualidade do ecossistema. No presente estudo, foram determinados os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e os elementos As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, U, Th e Zn em 24 amostras de cogumelos e de solos coletadas na região do Planalto de Poços de Caldas. O Planalto de Poços de Caldas é um exemplo de região de anomalia radioativa, apresentando cerca de 70 delas. No presente estudo, dois grupos de amostragem (do total de sete grupos) foram realizados em locais que apresentam tais anomalias. A determinação dos elementos estáveis foi realizada por Análise por Ativação com Nêutrons. As determinações de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de cogumelos foram realizadas por separação radioquímica e suas atividades foram quantificadas em contador proporcional de fluxo gasoso Alfa e Beta Total. A determinação destes mesmos radionuclídeos nos solos foi realizada por Espectrometria Gama. A determinação dos isótopos de tório nos cogumelos foi realizada por separação radioquímica e quantificada por Espectrometria Alfa. O controle analítico de todas as metodologias utilizadas no presente trabalho foi realizado com o uso de materiais de referência certificados. Foram também analisadas amostras de cogumelos de uma região que não apresenta anomalia radioativa e os resultados comparados com os valores obtidos no Planalto de Poços de Caldas, podendo assim comprovar que cogumelos atuam como indicadores de contaminação radioativa do meio ambiente. As concentrações e atividades mais elevadas foram encontradas nas amostras coletadas nas zonas rurais do Planalto de Poços de Caldas, onde ocorrem as maiores anomalias radioativas na região. Pelos resultados obtidos, pode-se comprovar a eficiência do cogumelo como indicador de contaminação radioativa ambiental, sendo estes apropriados para avaliar os níveis de radioatividade em áreas de Materiais Radioativos de Ocorrência Natural.

EVALUATION OF U, Th, ^{226}Ra , ^{228}Ra AND ^{210}Pb LEVELS AND OTHER ELEMENTS IN MUSHROOMS FROM OF A HIGH NATURAL RADIATION REGION OF BRAZIL

Mychelle Munyck Linhares Rosa

Abstract

Mushrooms are fungi species capable of retaining radionuclides and stable elements that are important to the environment from the toxicological and radiological point of view. Studies have shown that mushrooms can be used as bioaccumulators in monitoring and evaluation of contamination and quality of ecosystems. The present study determined the radionuclides ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{210}Pb and the elements As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, U, Th and Zn in 24 samples of mushrooms and soils collected on the Poços de Caldas plateau. The Poços de Caldas plateau has around 70 radioactive anomalies. In the present study, two groups of samples (of a total of seven groups) were taken from areas with radioactive anomalies. The determination of the stable elements was carried out by Neutron Activation Analysis. The determination of ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{210}Pb in mushroom samples was carried out by radiochemical separation and their activities were measured in a Total Alpha and Beta Gas Flow Proportional Counter. These radionuclides were determined in soil by Gamma Spectrometry. The determination of thorium isotopes in mushrooms was carried out also by radiochemical separation and measured by Alpha Spectrometry. The analytical control of the methods utilized in this study was carried out with certified reference materials. Samples of mushrooms of a region that presented no radioactive anomaly were analyzed and compared with values obtained from the Poços Caldas Plateau, in order to identify the behavior of mushrooms as radioactive contamination indicators in their natural environment. Higher concentrations and activities were found in samples collected in the rural area of the Poços de Caldas Plateau, which has the largest radioactive anomalies in the region. The results show that mushrooms are efficient indicators of environmental radioactive contamination and are appropriate to evaluate levels of radioactivity in areas which contain naturally occurring radioactive materials.

SUMÁRIO

CAPÍTULO 1	1
INTRODUÇÃO	1
1.1 Revisão da Literatura.....	6
1.2 Radiação Natural	11
1.3 Séries Radioativas.....	12
1.4 Objetivos.....	17
CAPÍTULO 2	18
METODOLOGIAS ANALÍTICAS	18
2.1 Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental (INAA)	18
2.2 Espectrometria Gama.....	20
2.3 Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total	23
2.4 Separação Radioquímica e Contagem por Espectrometria Alfa.....	26
CAPÍTULO 3	28
PARTE EXPERIMENTAL.....	28
3.1 Amostragem	28
3.2 Preparação das amostras de cogumelos e de solo	38
3.3 Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental	40
3.3.1- Preparação das Amostras de Cogumelo e de Solo	40
3.3.2- Preparação dos padrões sintéticos dos elementos de interesse	41
3.3.3- Irradiação das amostras e dos padrões.....	41
3.3.4- Medições das Atividades	41
3.4 Espectrometria Gama.....	42
3.4.1- Preparação das Amostras de Solo	42
3.4.2- Equipamento.....	43
3.4.3- Calibração do Equipamento – Espectrômetro Gama.....	44
3.4.4- Determinação dos Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de solo	44
3.5 Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total	45
3.5.1- Preparação das Amostras de Cogumelo	45

3.5.2- Separação Radioquímica.....	46
3.5.3- Equipamento.....	47
3.5.4- Calibração do Equipamento – Contador Proporcional de Fluxo Gasoso	48
3.5.5- Determinação dos Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de cogumelos.....	49
3.6 Separação Radioquímica e Contagem por Espectrometria Alfa.....	51
3.6.1- Preparação das Amostras de Cogumelos	51
3.6.2- Separação dos Isótopos de Tório nas Amostras de Cogumelo	52
3.6.3- Eletrodeposição	52
3.6.4- Equipamento.....	53
3.6.5- Calibração do Equipamento – Espectrômetro Alfa	54
3.6.6- Determinação dos Isótopos de Tório	54
CAPÍTULO 4	56
RESULTADOS E DISCUSSÃO	56
4.1 Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental	58
4.1.1- Validação da INAA.....	59
4.1.2- Cálculo do Limite de Detecção INAA.....	62
4.1.3- Resultados INAA	63
4.1.4- Comparação de Resultados Obtidos por INAA com Cogumelos Coletados em São Paulo	77
4.2 Análise por Espectrometria Gama.....	79
4.2.1- Validação da Análise de Espectrometria Gama.....	79
4.2.2- Resultados Obtidos por Espectrometria Gama para os Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas Amostras de Solo	81
4.3 Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total.....	84
4.3.1- Validação da Análise de Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total.....	84
4.3.2- Resultados da Determinação dos Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb por Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total nas Amostras de Cogumelos	86
4.3.3- Fator de Transferência Solo-Cogumelo para os Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb	91

4.3.4- Comparação de Resultados de ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra com os Obtidos em uma Região de Baixa Atividade Natural	93
4.4 Análise por Espectrometria Alfa	94
4.4.1- Validação da Análise por Espectrometria Alfa	94
4.4.2- Resultados da determinação dos Isótopos de Tório nas Amostras de Cogumelos por Espectrometria Alfa	95
4.4.3- Determinação da Atividade dos Isótopos de Tório em Cogumelos Coletados em uma Região de Baixa Radioatividade Natural	98
CAPÍTULO 5	99
CONCLUSÃO	99
CAPÍTULO 6	101
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	101

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1 – Cava da mina nas instalações da INB	5
FIGURA 2 – Série Natural do ^{238}U	13
FIGURA 3 – Série Natural do ^{232}Th	14
FIGURA 4 – Pontos de Anomalias Radiativas no Planalto de Poços de Caldas ..	29
FIGURA 5 – Fluxograma geral da parte experimental	30
FIGURA 6 – Amostra de Cogumelo	33
FIGURA 7 – Pontos de Amostragem no Planalto de Poços de Caldas	35
FIGURA 8 – Mapa de intensidade radioativa total do planalto de Poços de Caldas	36
FIGURA 9 – Taxa de exposição externa nos pontos de coletas das amostras	38
FIGURA 10 – Sistema de Espectrometria Gama do LAN-IPEN.....	42
FIGURA 11 – Espectrômetro Gama do LAPOC.....	43
FIGURA 12 – Fluxograma da Análise por Espectrometria Gama	45
FIGURA 13 – Contador Proporcional de Fluxo Gasoso do LAPOC.....	48
FIGURA 14 – Fluxograma da Separação Radioquímica de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb .	50
FIGURA 15 – Fluxograma da Precipitação e Co-precipitação do Ra e Pb	51
FIGURA 16 – Célula de eletrodeposição	53
FIGURA 17 – Espectrômetro Alfa do LAPOC	54
FIGURA 18 – Fluxograma da separação e quantificação dos isótopos de Th.....	55
FIGURA 19 – Valores de z-score nos Materiais de Referência por INAA.....	62
FIGURA 20 – Concentração de As nos cogumelos e solos.....	68
FIGURA 21 – Concentração de Co nos cogumelos e solos	68
FIGURA 22 – Concentração de Cr nos cogumelos e solos	69
FIGURA 23 – Concentração de Cs nos cogumelos e solos.....	69
FIGURA 24 – Concentração de Fe nos cogumelos e solos.....	70
FIGURA 25 – Concentração de K nos cogumelos e solos.....	70
FIGURA 26 – Concentração de La nos cogumelos e solos	71
FIGURA 27 – Concentração de Mn nos cogumelos e solos	71
FIGURA 28 – Concentração de Na nos cogumelos e solos	72
FIGURA 29 – Concentração de Na nos cogumelos e solos	72
FIGURA 30 – Concentração de Th nos cogumelos e solos.....	73

FIGURA 31 – Concentração de U nos cogumelos e solos	73
FIGURA 32 – Concentração de Zn nos cogumelos e solos	74
FIGURA 33 – Valores de z-score no Material de Referência IAEA-327-Soil por Espectrometria Gama	80
FIGURA 34 – Valores de z-score no Material de Referência IAEA-327-Soil por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total	85
FIGURA 35 – Atividades de ^{226}Ra nos cogumelos e solos	89
FIGURA 36 – Atividades de ^{228}Ra nos cogumelos e solos	90
FIGURA 37 – Atividades de ^{210}Pb nos cogumelos e solos	90
FIGURA 38 – Valores de z-score no Material de Referência IAEA-327-Soil por Espectrometria Alfa.....	95

LISTA DE TABELAS

TABELA 1 – Formas de Decaimento do ^{238}U	15
TABELA 2 – Formas de Decaimento do ^{232}Th	16
TABELA 3 – Pontos de Amostragem dos Cogumelos e dos Solos.....	32
TABELA 4 – Taxa de exposição externa nos pontos de coletas e identificação das espécies das amostras	37
TABELA 5 – Determinação do teor de umidade nas amostras de cogumelo e solo	39
TABELA 6 – Concentrações dos elementos determinados no Material de Referência INCT- MPH2 por INAA.....	60
TABELA 7 – Concentrações dos elementos determinados no Material de Referência IAEA-Mushroom por INAA	60
TABELA 8 – Concentrações médias dos elementos determinados no Material de Referência RM 8704 por INAA.....	61
TABELA 9 – Limites de Detecção na INAA.....	63
TABELA 10 – Concentrações médias dos elementos determinados nas amostras de cogumelos por INAA	64
TABELA 11 – Concentrações médias dos elementos determinados nas amostras de solos por INAA	65
TABELA 12 – Fator de Transferência dos elementos determinados nas amostras por INAA	75
TABELA 13 – Concentrações médias dos elementos determinados nas amostras de cogumelos de uma região de baixa radiação de fundo por INAA	78
TABELA 14– Atividades dos radionuclídeos determinados no Material de Referência IAEA-Soil-327 por Espectrometria Gama	80
TABELA 15 – Atividades dos radionuclídeos determinados nas amostras de solo por Espectrometria Gama.....	81
TABELA 16– Atividades dos radionuclídeos determinados no Material de Referência IAEA-Soil-327 por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total.....	85
TABELA 17– Atividades do radionuclídeos determinados nos cogumelos por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total.....	87

TABELA 18 – Fator de Transferência Solo-Cogumelos para os Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb	92
TABELA 19 – Atividades dos radionuclídeos de ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra determinados nas amostras de cogumelos de São Paulo.....	93
TABELA 20 – Atividades dos isótopos de Tório no Material de Referência IAEA-Soil-327 por Espectrometria Alfa	94
TABELA 21– Atividades dos isótopos de Tório determinados por Espectrometria Alfa em cogumelos.....	97
TABELA 22 – Atividades dos isótopos de tório determinados nas amostras de cogumelos coletados na região de São Paulo	98

CAPÍTULO 1

INTRODUÇÃO

O monitoramento biológico do meio ambiente tem demonstrado que muitos organismos vivos são particularmente úteis na avaliação dos níveis de poluição e da qualidade dos ecossistemas (Marzano et al., 2001). Desses organismos, podem-se destacar os crustáceos, peixes e cogumelos que são úteis para avaliar os índices de poluição e a qualidade do ecossistema (Ruhm et al., 1997; Kalac, 2001, Garcia et al., 2009, Melgar et al., 2009).

Dentro do reino animal, tais espécies são consideradas “indicadores”, pois sua presença pode indicar a ocorrência de substâncias ou elementos presentes em elevadas quantidades no meio ambiente, ou seja, podem ser considerados como bioindicadores de ocorrência de um determinado elemento (Demirbas, 2001).

De acordo com Turkekul et al. (2004), as concentrações de elementos encontrados em cogumelos são consideravelmente mais elevadas do que as mesmas em cultivos de plantas, legumes e frutas em uma determinada região. Isto sugere que os cogumelos possuem um mecanismo muito eficaz que permite a bioacumulação de elementos a partir do ecossistema.

Cogumelos fazem parte da biodiversidade dos fungos, há cerca de 300 milhões de anos. Na pré-história os humanos já utilizavam os cogumelos selvagens coletados em florestas como alimento (Chang & Miles apud Moura, 2008). Existem aproximadamente 45 mil espécies de cogumelos descritas na literatura, das quais duas mil são classificadas como comestíveis (Urban & Siqueira apud Moura, 2008).

Os primeiros grupos de fungos foram classificados como sendo comestível ou venenoso, levando-se em consideração critérios de utilidade para o homem. Seguindo-se critérios de ocorrência, podem ser classificados como terrestres, arbóreo ou hipógeos. Somente no século XVII os caracteres morfológicos dos maiores grupos de fungos começaram a ser reconhecidos. Os cogumelos são considerados fungos superiores, os quais pertencem aos filos Ascomycota e Basidiomycota. Estes são incapazes de sintetizar matéria orgânica, são aclorofilados e não realizam fotossíntese, sendo denominados de heterotróficos (Kirk et al., 2008).

Em geral, com base em seu peso seco, os cogumelos apresentam composição de 39,9% de carboidratos, 17,5% de proteínas e 2,9% gorduras e o restante é composto por minerais, o que explica o alto teor e fácil acumulação de elementos em seu corpo frutífero (Latiff et al., 1996).

Os cogumelos proliferam tipicamente em florestas e campos. Entretanto, quase todos os ecossistemas (incluindo desertos e tundra), com o substrato adequado, irão favorecer seu crescimento. O meio particular de crescimento pode consistir, por exemplo, de árvore em decomposição, gramados abertos, fezes de animais ou nas sombras das árvores. Os cogumelos podem ser divididos em três grupos, a saber: os saprófitos, que vivem e metabolizam matéria orgânica; os parasitas, que vivem de outras espécies em uma relação não simbiótica e os simbióticos, os quais através do uso de micorrizas subterrâneas (simbiose entre certos fungos e raízes de algumas plantas) formam uma associação estreita com sua planta hospedeira (Duff & Ramsey, 2008).

Extensiva pesquisa tem sido realizada desde a década de 70 sobre o conteúdo de elementos traço essenciais e tóxicos em cogumelos (Karadeniz & Yaprak, 2011, Vaaramaa et al., 2010, Malinowska et al. 2006).

Muitas espécies de cogumelos silvestres são conhecidas por acumular altos níveis de vários elementos, principalmente cádmio, mercúrio, cobre e chumbo (Kalac & Svoboda, 2000). Dentre estes elementos, destacamos alguns conhecidos por suas toxicidades em baixas concentrações (Demirbas, 2001).

A medição da radioatividade no meio-ambiente e nos alimentos é extremamente importante para monitorar os níveis de radiação, que o homem pode estar exposto de forma direta ou indireta. Em particular, os cogumelos têm a capacidade de reter radionuclídeos importantes do ponto de vista toxicológico e radiológico, como ^{137}Cs , ^{238}U , ^{232}Th e ^{210}Pb , do meio ambiente (Szanto et al., 2007; Guillén et al., 2009).

Desde o acidente nuclear ocorrido em um dos reatores da usina de Chernobyl, na Ucrânia em 1986, intensificou-se a determinação de radionuclídeos em amostras de cogumelos, principalmente no continente europeu, pois se verificou que esse tipo de fungo acumulava em seu corpo de frutificação níveis elevados de radionuclídeos. Após o acidente, várias técnicas avaliando a deposição e a incorporação de radionuclídeos têm sido empregadas nas proximidades deste local. (Smith et al., 1993; Kirchner & Daillant, 1998; Kaduka et al., 2006, Duff & Ramsey, 2008).

Em casos de contaminação radioativa, os radionuclídeos são incorporados pelo solo em considerável extensão e somente uma fração pode ser assimilada por materiais orgânicos. Desta forma, é importante conhecer a concentração total desses radionuclídeos, bem como a sua disponibilidade (Szeles, 1994).

Estudos de regiões de alta radioatividade natural têm despertado muito interesse do ponto de vista de proteção radiológica. Estudos que avaliam o detrimento biológico no homem, decorrente de exposição de dose de radionuclídeos naturais das séries do ^{238}U e do ^{232}Th , que possuem meias-vidas longas, são muito importantes (Oliveira, 1993).

O Planalto de Poços de Caldas possui o aspecto de uma caldeira abatida de um vulcão, causada pela associação de eventos tectônicos, processos de intemperismo e erosão (Schorsch, 1991).

Este planalto possui diversas anomalias radioativas mundialmente conhecidas, sendo que uma delas, o Morro do Ferro, apresenta umas das mais elevadas taxas de dose externa natural do mundo. No planalto está localizada também a primeira mineradora de urânio em escala comercial realizada no País, a Indústrias Nucleares do Brasil (INB) que atualmente, encontra-se em processo de descomissionamento.

Um pouco do histórico dessa região (Projeto Planalto Poços de Caldas, 2009):

1948 – foi detectada radioatividade em minerais de zircônio no Planalto Poços de Caldas.

1959 – a Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) iniciou uma usina para extração de urânio, encerrada em 1961.

1965 – descobertas as jazidas no Campo do Agostinho (urânio e molibdênio).

1970 – descobertas as jazidas de urânio do Campo do Cercado (atual INB).

1974 – abertura das primeiras galerias de urânio no Campo do Cercado. Nesse mesmo ano foi criado o Laboratório de Poços de Caldas (LAPOC) da CNEN.

1982 – iniciou-se a exploração comercial de urânio.

1995 – paralisação da lavra.

A FIG. 1 apresenta a cava da mina nas instalações da INB, atualmente em fase de descomissionamento.

FIGURA 1 – Cava da mina nas instalações da INB

Sólidos que contêm radionuclídeos de ocorrência natural são denominados de Materiais Radioativos de Ocorrência Natural (NORM), que podem ser resultantes tanto da estrutura geológica e geoquímica do solo, como do teor radioativo da água que flui a partir de fontes de água quente, ou ainda devido aos raios cósmicos. Muitas áreas do mundo caracterizam-se por apresentar uma elevada radioatividade natural. Desta forma, o Planalto de Poços de Caldas é considerado uma região NORM (Sohrabi, 1998).

Algumas práticas industriais, envolvendo recursos naturais, concentram esses radionuclídeos a um grau que pode gerar riscos ao ser humano e ao ambiente que o circunda se não for controlado. Entre as atividades industriais destacam-se: o processamento mineral, a produção de gás/petróleo e ácido fosfórico, detergentes, rações animais, aditivos em alimentos, pesticidas e outros produtos químicos (IAEA, 2003).

A presença de matéria orgânica no ambiente promove a transformação do meio, conferindo notáveis propriedades de agregação, porosidade, retenção de água e aumento na capacidade de troca iônica. Desta maneira, os materiais orgânicos retiram do solo água e minerais essenciais ou não para seu desenvolvimento. A matéria orgânica presente no solo é utilizada como indicador de sustentabilidade ou bioacumulador, principalmente em regiões tropicais (Martius et al.,2001).

A transferência de elementos e radionuclídeos do solo para materiais orgânicos determina a extensão da contaminação de alimentos e plantas, por consequência, o risco de exposição da população à radioatividade e a outros elementos devido à ingestão de alimentos. O cálculo de dose no homem devido à ingestão de alimentos contaminados e a modelagem matemática dos caminhos percorridos por um radionuclídeo ou elemento em um determinado ecossistema até chegar ao homem necessitam de informações que expressem os processos que ocorrem regionalmente. Estudos radiológicos têm demonstrado que alguns ecossistemas apresentam condições que favorecem a transferência de radionuclídeos do solo para materiais orgânicos (Frissel et al., 2002; Skarlou et al., 2001).

1.1 Revisão da Literatura

A radioatividade é um processo de desintegração espontânea ou induzida de núcleos atômicos, associando-se com emissão de radiação, podendo ser de origem natural ou provocada pelo homem. Os efeitos remanescentes do acidente

de Chernobyl na Ucrânia (1986) continuam a afetar o ecossistema europeu até o presente momento e, isto pode ser avaliado pela contaminação radioativa encontrada em materiais orgânicos neste continente. Com os recentes acontecimentos no reator de Fukushima Daiichi no Japão (2011), ligados às incertezas das consequências deste desastre, a contaminação do meio ambiente e de alimentos voltou a ser tema de grandes discussões e pesquisas (Heal With Food.org, 2011).

As espécies de cogumelos que apresentam esporos sob seu “chapéu” e caules são mais propensas a acumular radionuclídeos em seu corpo frutífero, desempenhando importante papel de um organismo bioacumulador (Heal With Food.org, 2011).

Inúmeros estudos têm sido realizados para verificar o conteúdo de elementos traço essenciais, tóxicos e de radionuclídeos em cogumelos comestíveis ou não, desde a década de 70. Vários autores têm avaliado fatores de transferências de alguns radionuclídeos em diferentes espécies de cogumelos (Karadeniz & Yaprak, 2011).

A medida de transferência de radionuclídeos tem sido recomendada pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) devido à sua simplicidade conceitual e uso comum na radioecologia. Os valores de transferência podem ser influenciados por alguns fatores como as características do solo, condições climáticas, forma físico-química do radionuclídeo e as diferenças entre as espécies (Karadeniz & Yaprak, 2011).

Kirchner & Daillant (1998) determinaram as concentrações de ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{210}Pb e ^{226}Ra por espectrometria gama em amostras de 27 espécies de cogumelos coletadas em 3 diferentes áreas da França, das quais duas possuem

altos níveis de urânio. Verificaram que ^{210}Pb em cogumelos são originários do solo e que apesar da alta concentração de ^{137}Cs encontradas, as maiores doses devidas a ingestão de cogumelos comestíveis devem-se ao ^{210}Pb .

A análise de cogumelos coletados em diferentes locais no Japão possibilitou sua utilização como monitores de contaminação da biosfera e revelou seu papel na migração de radionuclídeos no solo e na transferência através da cadeia alimentar (Sugiyama et al., 2000).

Malinowska et al. (2006) avaliaram níveis de ^{137}Cs originários da nuvem radioativa do acidente de Chernobyl, bem como os níveis dos radionuclídeos naturais de ^{40}K e ^{210}Pb presentes em amostras de cogumelos (talos e “chapéus”) e nos respectivos solos coletados em regiões florestais da Polônia, com a finalidade de calcular o fator de transferência (FT) de radionuclídeos do solo para o cogumelo. Os “chapéus” das amostras de cogumelos apresentavam atividades significativamente mais elevadas em comparação aos talos das mesmas.

Lim et al. (2012) determinaram 28 elementos (Al, As, Ba, Br, Ca, Ce, Cl, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, Hf, I, K, La, Mg, Mn, Na, Rb, Sc, Se, Sm, Sr, Th, Ti, V e Zn) em amostras de cogumelos *Phellinus* coletadas na Coreia, Camboja e Vietnã, aplicando a técnica de Análise por Ativação Neutrônica Instrumental. Observaram concentrações de Ca, K e Mg muito mais elevadas comparadas aos outros elementos analisados, sendo que os teores dos elementos presentes nos cogumelos coletados em Camboja foi cerca de duas vezes maior que os encontrados nos cogumelos coletados na Coreia e cerca de seis vezes maior em cogumelos coletados no Vietnã.

As atividades de ^{210}Po e ^{210}Pb foram determinadas em cogumelos e frutos silvestres coletados em regiões finlandesas. Os resultados mostraram que foram

obtidos níveis radioativos mais elevados nas amostras de cogumelos comparados aos frutos silvestres, comprovando que os cogumelos possuem um mecanismo mais eficaz de absorção dos radionuclídeos do meio ambiente (Vaaramaa et al., 2010).

A bioacumulação e o fator de transferência de Cs radioativo do solo para os cogumelos têm sido bastante estudados, porém pouco se sabe dos fatores de transferência de urânio e tório e de seus produtos de decaimento (Baeza & Guillén, 2006).

Mietelski et al. (2010) determinaram as atividades de ^{40}K e ^{137}Cs em cerca de 70 espécies de fungos coletadas em uma única floresta no sul da Polônia e confirmaram a capacidade de acumulação de radionuclídeos em fungos em geral.

Karadeniz & Yaprak (2011) avaliaram a transferência dos radionuclídeos ^{137}Cs , ^{40}K e de alguns elementos em 25 amostras de 12 diferentes espécies de cogumelos na Turquia. Observaram que as concentrações variaram até mesmo para as amostras da mesma espécie e observaram ainda que o elemento que apresentou maiores valores de transferências do solo para o cogumelo foi o K, seguido pelos elementos Rb, Zn, Cu, Cd, S, Cs e Hg.

No Japão, após o acidente de Fukushima, monitoração de alimentos, com acompanhamentos da deposição de Cs e I e emissão gama, tem sido realizada periodicamente nos produtos agrícolas e outros alimentos que são cultivados em locais nas proximidades da usina de Fukushima Daiichi. Em maio de 2011, cinco amostras de cogumelo shiitake foram coletadas na cidade de Fukushima, das quais duas apresentaram valores de ^{134}Cs e ^{137}Cs superiores aos limites de regulação. Por esta razão, o Ministério da Saúde do Japão restringiu a

distribuição e o consumo deste cogumelo comestível proveniente desta região (IAEA, 2011).

Estudos sobre monitoramento ambiental utilizando cogumelos foram iniciados em 2006 no Laboratório de Análise por Ativação com Nêutrons (LAN – IPEN-CNEN/SP).

Castro (2008) determinou as atividades dos radioisótopos naturais ^{40}K , ^{232}Th , ^{238}U e de ^{137}Cs em cogumelos comestíveis comercializados em cidades do Estado de São Paulo. As espécies analisadas foram *Agaricus sp*, *Lentinula sp* e *Pleurotus sp*. As atividades de ^{40}K , ^{137}Cs , ^{232}Th e ^{238}U foram medidas por Espectrometria Gama. Para as amostras de cogumelos comestíveis analisadas, as atividades variaram entre 461 e 1535 Bq.kg⁻¹, 1,4 e 10,6 Bq.kg⁻¹, 6,2 e 54,2 Bq.kg⁻¹ e 14 e 66 Bq.kg⁻¹ para ^{40}K , ^{137}Cs , ^{232}Th e ^{238}U , respectivamente. Os resultados encontrados mostraram que os níveis de ^{137}Cs estão de acordo com o fallout radioativo do hemisfério Sul, apresentando teores abaixo dos níveis estabelecidos pela CNEN. Os valores das atividades encontradas para os radionuclídeos analisados estão dentro dos níveis normais de radioatividade para este alimento. Este trabalho apresentado por Castro foi o primeiro realizado para avaliar o conteúdo radioativo em cogumelos comestíveis no Brasil.

Outro estudo realizado no LAN – IPEN/CNEN-SP foi o de Moura (2008), onde foram determinados os teores dos elementos As, Br, Co, Cr, Cs, Fe, K, Na, Rb, Se e Zn em amostras de cogumelos comestíveis por Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental (INAA). As amostras analisadas foram dos gêneros *Agaricus*, *Lentinula* e *Pleurotus*. A avaliação dos resultados mostrou uma variação nas concentrações dos elementos determinados entre os diferentes gêneros. Em algumas amostras foram encontrados altos teores de As, possivelmente devido à

contaminação no cultivo pelo uso de pesticida nos substratos de onde os cogumelos retiram seus nutrientes. A avaliação dos resultados também mostrou que os cogumelos podem ser considerados como boa fonte nutricional, principalmente devido aos baixos teores de Na e altos teores de K, Fe e Zn.

Em vista da utilização dos cogumelos como bioindicadores e a presença da alta radioatividade natural do Planalto de Poços de Caldas, o presente trabalho foi desenvolvido para determinar os teores dos elementos essenciais, tóxicos e das atividades dos radionuclídeos naturais presentes em cogumelos coletados nesta região.

1.2 Radiação Natural

Os Materiais Radioativos de Ocorrência Natural (NORM) sempre fizeram parte de nosso cotidiano. Os seres humanos e seu ambiente sempre estiveram expostos à radiação proveniente de fontes naturais e artificiais.

As fontes naturais podem ser agrupadas em três tipos de acordo com sua origem:

- cósmica – de origem extraterrestre.
- cosmogênica – proveniente da interação da radiação cósmica com os átomos presentes na atmosfera.
- radiação natural de origem terrestre, proveniente dos radionuclídeos naturais existentes na crosta da Terra, denominados NORM.

De acordo com a IAEA (2004), a radiação natural contribui com aproximadamente 86% da dose anual recebida pela população e a medicina nuclear contribui quase que totalmente para as doses de natureza artificial. Apesar da variação que ocorre de região para região, estima-se que a dose efetiva média mundial devido à radiação natural seja de 2,4 mSv por ano.

1.3 Séries Radioativas

Na natureza existem elementos radioativos naturais de número atômico elevado, que realizam desintegrações sucessivas e dão origem a outro isótopo também radioativo e assim sucessivamente, até que alcance uma forma isotópica estável. Antes de se tornarem estáveis, durante as desintegrações sucessivas, estes tendem a atingir o equilíbrio radioativo. Em cada um desses sucessivos decaimentos os núcleos emitem partículas alfa ou beta e radiação gama. Essas sequências de núcleos são denominadas *Séries Radioativas*, sendo constatado a existência de 3 destas séries, que são: Série do Urânio, Série do Tório e Série do Actínio, iniciando com o ^{238}U , ^{232}Th e ^{235}U , respectivamente e terminando com os isótopos estáveis do chumbo: ^{206}Pb , ^{207}Pb e ^{208}Pb .

Do ponto de vista radiológico as séries radioativas naturais do ^{238}U e do ^{232}Th são as principais responsáveis pelas exposições radioativas naturais do homem na Terra, sendo as que mais contribuem para a taxa de dose equivalente proveniente de fontes naturais (UNSCEAR, 2000).

As FIGs. 2 e 3 apresentam os decaimentos das séries radioativas naturais do ^{238}U e do ^{232}Th , respectivamente.

As principais formas de decaimento das séries radioativas naturais do ^{238}U e do ^{232}Th podem ser melhores entendidas e complementadas avaliando as TABs. 1 e 2, as quais completam as informações apresentadas nos fluxogramas de decaimentos dessas séries.

FIGURA 2 – Série Natural do ^{238}U

FIGURA 3 – Série Natural do ^{232}Th

TABELA 1 – Formas de Decaimento do ^{238}U

Nuclídeo	Meia Vida $T_{1/2}$	Maiores Energias (MeV) e porcentagens		
		α	β	γ
^{238}U	$4,51 \times 10^9$ a	4,15 (20,9%) 4,20 (79%)		
^{234}Th	24,1 d		0,2 (70%) 0,104 (19%) 0,0103 (8%)	0,063 (4%) 0,093 (5%)
^{234}Pa	1,17 m		2,29 (98%) 1,23 (1%)	0,765 (0,3%) 1,001 (0,84%)
^{234}U	$2,47 \times 10^5$ a	4,72 (28%) 4,77 (72%)	0,47 (31%)	0,95 (0,03%) 0,053 (0,2%)
^{230}Th	$8,0 \times 10^4$ a	4,62 (24%) 4,68 (76%)		0,068 (0,4%)
^{226}Ra	1602 a	4,60 (6%) 4,78 (94%)		0,186 (4%)
^{222}Rn	3,823 d	5,49 (100%)		0,510 (0,08%)
^{218}Po	3,05 m	6,00 (100%)		
^{214}Pb (99,98%)	↓ 26,8 m		1,03 (6%) 0,67 (49%) 0,72 (42%)	0,295 (19%) 0,352 (36%) 0,242 (7%)
^{218}At (0,02%)	↓ 2 s	6,65 (6%) 6,70 (94%)		
^{214}Bi			3,28 (18%)	0,609 (47%)
	19,7 m	5,45 (53,9%) 5,51 (39,2%)	1,9 (7%) 1,5 (34%) 1,4 (8%)	1,120 (17%) 1,76 (15%) 2,2 (6%)
^{214}Po (99,96%)	↓ 164 μs	7,69 (100%)		0,799 (0,031%)
^{210}Ti (0,04%)	↓ 1,3 m		4,2 (30%) 1,9 (24%)	0,296 (80%) 0,795 (100%)
^{210}Pb	21 a		0,016 (80%) 0,061 (20%)	0,047 (4%)
^{210}Bi	5,01 d		1,161 (100%)	
^{210}Po (~100%)	↓ 138,4 d	5,305 (100%)		0,803 (0,001%)
^{208}Tl ($2 \times 10^{-4}\%$)	↓ 4,19 m		1,571 (100%)	
^{206}Pb	Estável			

(fonte:Pondeiro, 2006).

TABELA 2 – Formas de Decaimento do ^{232}Th

Nuclídeo	Meia Vida $T_{1/2}$	Maiores Energias (MeV) e porcentagens		
		α	β	γ
^{232}Th	$1,41 \times 10^{10}$ a	3,95 (24%) 4,01 (76%)		
^{228}Ra	5,8 a		0,055 (100%)	
^{228}Ac	6,13 h		1,18 (35%) 1,75 (12%) 2,09 (12%)	0,34 (11%) 0,91 (26%) 0,97 (16%)
^{228}Th	1,91 a	5,34 (28%) 5,43 (71%)		0,084 (1,2%)
^{224}Ra	3,64 a	5,45 (6%) 5,68 (94%)		0,241 (4,1%)
^{220}Rn	55 s	6,29 (100%)		0,55 (0,07%)
^{216}Po	0,15 s	6,78 (100%)		
^{212}Pb	10,64 h		0,346 (81%) 0,586 (14%)	0,239 (43%) 0,300 (3,3%)
^{212}Bi	60,6 m	6,05 (25%) 6,09 (10%)	1,55 (5%) 2,26 (55%)	0,040 (3%) 0,727 (10%) 1,620 (2,3%)
^{212}Po (66,3%)	304 ns	8,78 (100%)		
^{208}Tl (33,7%)	3,10 m		1,28 (25%) 1,52 (21%) 1,80 (50%)	0,511(23%) 0,583 (85%) 0,86 (12,5%) 0,28 (6,4%)
^{208}Pb	Estável			

(fonte: Pondeiro, 2006).

Os radionuclídeos podem chegar até os seres humanos por inalação, ingestão (água, alimentos ou poeira) ou contaminação da pele (contato direto). A água é o meio de transmissão dominante para os radionuclídeos atingirem os seres humanos, mas as geleiras e o vento também podem transportar partículas de solo e seu conteúdo, dentre eles os radionuclídeos naturais.

1.4 Objetivos

Objetivo geral:

Avaliar o comportamento de cogumelos como indicadores de contaminação radioativa no meio ambiente em uma região de elevada radioatividade natural do Brasil e em uma região de baixo radiação de fundo.

Objetivos específicos:

Determinar os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb em amostras de cogumelos e de solos coletadas na região do Planalto de Poços de Caldas. Estes são radionuclídeos de grande importância por estarem presentes na cadeia das séries radioativas naturais do ^{238}U e ^{232}Th .

Determinar concentração de elementos como As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, U, Th e Zn nas amostras de cogumelos e solos.

Calcular as atividades dos isótopos de tório nas amostras de cogumelo, de modo a comparar com trabalhos já apresentados na literatura.

Determinar os fatores de transferências do solo para os cogumelos dos elementos e radionuclídeos.

Analisar amostras de cogumelos silvestres de uma região que não apresenta anomalia radiativa e comparar com os valores obtidos no Planalto de Poços de Caldas, de modo a comprovar se os cogumelos apresentam comportamento de bioacumulador.

CAPÍTULO 2

METODOLOGIAS ANALÍTICAS

Neste capítulo serão descritos os procedimentos e metodologias aplicados no presente trabalho para determinação dos elementos estáveis e dos radionuclídeos nas amostras de cogumelos e seus respectivos solos.

Para a determinação dos elementos As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, Th, U e Zn utilizou-se o método de Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental.

Para a determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de cogumelo foi empregada a técnica de separação radioquímica com contagem dos emissores alfa e beta total. Estes radionuclídeos foram determinados nas amostras de solo por Espectrometria Gama.

Aplicou-se ainda a Espectrometria Alfa para determinação dos isótopos de tório nas amostras de cogumelo.

2.1 Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental (INAA)

A Análise por Ativação com Nêutrons (NAA) comparativa consiste em submeter simultaneamente a amostra e padrão a um fluxo de nêutrons provenientes de um reator nuclear ou outra fonte de nêutrons. Os elementos constituintes da amostra e do padrão interagem com esses nêutrons, sofrendo reações nucleares e formando isótopos radioativos.

Uma vez que cada isótopo produzido no processo de ativação possui características de emissão próprias (meia vida e energia das partículas ou

radiação gama emitida), é possível efetuar determinações das concentrações dos elementos de interesse por comparação com padrões dos elementos com concentrações conhecidas.

A detecção dos radionuclídeos formados é feita por espectrometria gama, utilizando detectores semicondutores de germânio hiperpuro, que possuem elevado poder de resolução, que permitem determinação multielementares.

Os espectros de raios gama obtidos são analisados por programas de computação, que localizam os fotopicos, determinam suas energias e calculam suas áreas.

A concentração é obtida pela comparação de áreas de picos referentes a padrões, que são ativados juntamente com as amostras, utilizando-se para o cálculo a seguinte equação (1):

$$C_a^i = \frac{(A_a^i m_p C_p^i) e^{\lambda(t_a - t_p)}}{A_p^i m_a} \quad (1)$$

Onde:

C_a^i : Concentração do elemento i na amostra (mg.kg⁻¹).

C_p^i : Concentração do elemento i no padrão (mg.kg⁻¹).

A_a^i : Atividade do elemento i na amostra (cps).

A_p^i : Atividade do elemento i no padrão (cps).

m_a e m_p : massas da amostra e padrão, respectivamente (g e mg).

λ : constante de decaimento do radioisótopo (s).

t_a ; tempo de decaimento da amostra (s).

t_p ; tempo de decaimento do padrão (s).

2.2 Espectrometria Gama

A Espectrometria Gama pode ser utilizada para a determinação de uma grande variedade de radionuclídeos em diferentes matrizes. A potencialidade desta técnica permite o estudo de emissores gama em energias que podem variar de 30 keV até 2000 keV. Uma de suas vantagens está na capacidade de determinar simultaneamente diferentes radionuclídeos em uma mesma amostra, sem a necessidade de separação química. Na Espectrometria Gama é utilizado material semicondutor como germânio para o sistema de detecção (LAURIA *et al.*, 2007). Os detectores de germânio hiperpuros (HPGe) são os mais utilizados devido à boa resolução em energia e à possibilidade de medir atividades de radionuclídeos que emitem radiação gama de energia muito baixa. Os detectores são conectados a analisadores multicanais e *software* apropriados para identificação e quantificação dos radionuclídeos.

A emissão de raios gama geralmente ocorre em decorrência de um decaimento radioativo, por exemplo, após a emissão de partículas alfa ou beta. Ao emitir partículas alfa ou beta, na maioria das vezes, um núcleo decai para um estado excitado do núcleo descendente, que então alcançará seu estado fundamental pela liberação de um ou mais raios gama. Considerando que esses raios gama são característicos do decaimento de cada radionuclídeo e têm suas energias e intensidades conhecidas, torna-se possível fazer a identificação e a quantificação de um ou mais radionuclídeos presentes em um determinado material por meio de espectrometria de radiação gama. A atividade dos elementos presentes na amostra depende da taxa de contagem dos raios gama emitidos.

As vantagens do uso da Espectrometria Gama com detector de germânio são devidas principalmente ao seu tempo de resolução (aproximadamente 10^{-8} s), sua linearidade de resposta em uma ampla faixa de energia. As atividades de um grande número de radionuclídeos podem ser determinadas simultaneamente, além de ser uma técnica não destrutiva. É um método de boa precisão para análise de radionuclídeos.

Neste trabalho, a técnica de espectrometria gama foi utilizada também para a determinação dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb em solos. A determinação da atividade é realizada utilizando-se a equação (2):

$$A_n = \frac{C_a - C_{bg}}{m_a \cdot p_\gamma \cdot \epsilon} \quad (2)$$

Onde:

A_n : atividade do radionuclídeo (Bq kg^{-1}).

C_a : contagem total da amostra (cps).

C_{bg} : contagem total do Background (cps).

t: tempo de contagem (s).

m_a : massa utilizada para contagem (kg).

p_γ : probabilidade de emissão gama do radionuclídeo.

ϵ : eficiência do detector.

Durante as análises é necessário fazer uma correção de atenuação dos raios gama pela amostra devido à baixa energia dos raios gama emitidos pelo ^{210}Pb (46,5 keV) e à sua pequena abundância relativa (4%), que acarretam

dificuldade na exatidão das medidas. Esta correção é feita para compensar o efeito da absorção, pela matriz da amostra, da radiação emitida pelo ^{210}Pb disperso nessa matriz. Cutshall et al. (1983) desenvolveram um método para a determinação do fator de autoabsorção, onde um feixe de raio γ é atenuado seguindo a equação (3):

$$T = I e^{\mu \rho x} \quad (3)$$

Onde:

T: feixe de atenuação (padrão)

I: feixe sem atenuação (pote vazio)

μ : coeficiente de atenuação ($\text{cm}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)

ρ : densidade do material ($\text{g} \cdot \text{cm}^3$)

x: comprimento do feixe.

A atenuação da amostra é calculada pela equação (4):

$$O = A [(1 - e^{\mu \rho x}) \cdot (\mu \rho x)^{-1}] \quad (4)$$

Onde:

O: atenuação da amostra

A: taxa de foto emissão da amostra

O fator de correção de auto-absorção é dado pela equação (5):

$$A \cdot O^{-1} = [\ln (T \cdot I^{-1})] \cdot [T (I - 1)] \quad (5)$$

Esta correção foi realizada para a determinação da atividade de ^{210}Pb nas amostras dos solos.

2.3 Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total

Este método baseia-se em uma separação química de rádio e chumbo dos demais elementos presentes em uma amostra e separação entre si por precipitação seletiva, constituindo-se em um método indireto de determinação. Esta técnica é vantajosa, pois apresenta como característica principal uma baixa radiação de fundo e conseqüentemente um limite de detecção também muito baixo.

No início deste estudo, as determinações dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb em todas as amostras seriam realizadas por Espectrometria Gama. Porém, as medidas de atividades realizadas inicialmente nas amostras de cogumelos foram muito baixas, apresentando na maioria das vezes, valores abaixo do limite de detecção do equipamento. Por isso, optou-se por aplicar a separação radioquímica seguida de contagem alfa e beta total, que além de ser muito mais sensível, pois consegue detectar atividades aproximadamente três vezes menores em relação a Espectrometria Gama, é um método alternativo para avaliação desses radionuclídeos. Outra vantagem da separação radioquímica é que se utiliza uma massa muito pequena em relação à Espectrometria Gama, na qual é necessário utilizar uma massa relativamente grande (aproximadamente 60g de amostra) para obter uma boa sensibilidade.

O detector de fluxo gasoso é um contador que possui no seu interior uma câmara de gás e filamentos metálicos extremamente finos. Quando a partícula

(alfa ou beta) chega à câmara ioniza o gás Ar-CH₄ (argônio-metano). Esse gás ionizado se dirige para o filamento para se descarregar e é quantificado quanto à atividade em contagens por minutos. Cada partícula, alfa ou beta, tem um patamar ideal de contagem, que é estabelecido com a montagem e calibração periódica. Nesse patamar se fixa a alta voltagem para serem feitas as contagens alfa, que são diferentes das contagens beta.

A determinação da atividade do ²²⁶Ra é realizada utilizando-se a equação (6):

$$A_{^{226}\text{Ra}} = \frac{C_a - C_{bg}}{60 \cdot R_q \cdot m \cdot \varepsilon_f \cdot \eta_{abs(^{226}\text{Ra})} \cdot [1 + k \cdot (1 - e^{-\lambda_{^{222}\text{Rn}} \cdot t})]} \quad (6)$$

Onde:

$A_{^{226}\text{Ra}}$: atividade do ²²⁶Ra (Bq.kg⁻¹).

C_a : taxa de contagem total da amostra (cpm).

C_{bg} : taxa de contagem total do Background (cpm).

R_q : rendimento químico.

m : massa da amostra utilizada (kg).

ε_f : eficiência de contagem alfa do sistema, calculada com uma fonte de ²⁴¹Am.

$\eta_{abs(Ra-226)}$: Coeficiente de auto absorção.

$\lambda_{(Rn-222)}$: Constante de desintegração do ²²²Rn (0,181 d⁻¹).

t : tempo transcorrido entre a precipitação do Ra e a contagem da amostra (dias).

k : Constante de auto-absorção, expresso pela equação (7):

$$K = \frac{\eta_{abs}({}^{222}\text{Ra}) - \eta_{abs}({}^{218}\text{Po}) + \eta_{abs}({}^{214}\text{Po})}{\eta_{abs}({}^{226}\text{Ra})} \quad (7)$$

A determinação da atividade do ${}^{228}\text{Ra}$ é realizada utilizando-se a equação (8):

$$A_{228\text{Ra}} = \frac{C_a - C_{bg}}{60.R_q.m.\epsilon_{228\text{Ra}}} - \frac{\epsilon_{226\text{Ra}}.A_{226\text{Ra}}.(1 - e^{-\lambda_{222\text{Rn}}.t})}{\epsilon_{228\text{Ra}}} \quad (8)$$

Onde:

$A_{226\text{Ra}}$: atividade do ${}^{228}\text{Ra}$ (Bq.kg^{-1}).

C_a : taxa de contagem total da amostra (cpm).

C_{bg} : taxa de contagem total do Background (cpm).

R_q : rendimento químico.

m : massa da amostra utilizada (kg).

$\epsilon_{\text{Ra-228}}$: eficiência de contagem beta do ${}^{228}\text{Ra}$.

$\epsilon_{\text{Ra-226}}$: eficiência de contagem beta do ${}^{226}\text{Ra}$.

$A_{(\text{Ra-226})}$: atividade do ${}^{226}\text{Ra}$ (Bq.kg^{-1}).

t : tempo transcorrido entre a precipitação do Ra e a contagem da amostra (dias).

$\lambda_{(\text{Rn-222})}$: Constante de desintegração do ${}^{222}\text{Rn}$ ($0,181 \text{ d}^{-1}$).

A determinação da atividade do ${}^{210}\text{Pb}$ é realizada utilizando-se a equação (9):

$$A_{210\text{Pb}} = \frac{C_a - C_{bg}}{60.R_q.m.\epsilon_{\beta}.[1 - e^{-\lambda_{210\text{Bi}}.t}]} \quad (9)$$

Onde:

A_{Pb}^{210} : atividade do ^{210}Pb (Bq.kg^{-1}).

C_a : taxa de contagem total da amostra (cpm).

C_{bg} : taxa de contagem total do Background (cpm).

R_q : rendimento químico.

m : massa da amostra utilizada (kg).

ϵ_β : eficiência de contagem β do ^{210}Bi .

$\lambda_{(Bi-210)}$: Constante de desintegração do ^{210}Bi ($0,1383 \text{ d}^{-1}$).

t : tempo transcorrido entre a precipitação do PbCrO_4 e a contagem da amostra (dias).

2.4 Separação Radioquímica e Contagem por Espectrometria Alfa

Este método baseia-se em uma separação química de alto grau de purificação para reduzir ao máximo a espessura da fonte a ser quantificada, visto que as partículas alfa apresentam curto alcance por interagir com o meio. A Espectrometria Alfa é uma técnica muito utilizada para quantificar o desequilíbrio radioativo, visto que grande parte dos radioisótopos pertencentes às séries naturais de decaimento são emissores alfa (ver TAB. 1 e 2). Este método requer abertura química da amostra, separação e purificação através de resinas de troca iônica e eletrodeposição em plaquetas de prata, para quantificação em um Espectrômetro Alfa.

As principais vantagens da espectrometria alfa são: o preço relativamente baixo do equipamento, a elevada sensibilidade devido à baixa atividade de fundo e a alta seletividade para partículas alfa.

Na região do Planalto de Poços de Caldas, vários trabalhos avaliando a incorporação dos isótopos de tório em produtos agrícolas já foram realizados. Com o intuito de comparar com esses estudos, foi aplicada essa técnica para a determinação dos isótopos de Th nas amostras de cogumelos.

Neste trabalho, a técnica de espectrometria alfa foi utilizada para a determinação dos radionuclídeos ^{228}Th , ^{230}Th e ^{232}Th nos cogumelos. A determinação da atividade é realizada utilizando-se a equação (10):

$$A_n = \frac{C_a / t}{m_a \cdot R_q \cdot \varepsilon} \quad (10)$$

Onde:

A_n : atividade do radionuclídeo ($\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$).

C_a : contagem total da amostra (cps).

t: tempo de contagem (s).

m_a : massa utilizada para contagem (kg).

R_q : rendimento químico.

ε : eficiência do detector.

CAPÍTULO 3

PARTE EXPERIMENTAL

Neste capítulo serão descritos os procedimentos de amostragem, preparação das amostras de cogumelos e de solos e os procedimentos e metodologias aplicadas para determinação dos elementos e radionuclídeos no presente estudo.

3.1 Amostragem

Foi realizado inicialmente um estudo do Planalto de Poços de Caldas, local escolhido por apresentar uma radioatividade natural elevada. O Planalto consiste de uma caldeira circular de aproximadamente 35 km de diâmetro.

A FIG. 4 apresenta os pontos de anomalias presentes na região com o urânio (U) e tório (Th) encontrados separadamente, sendo o U associado ao zircônio ou molibidênio e o Th com óxidos de ferro e manganês.

A FIG. 5 apresenta o fluxograma da parte experimental aplicada para cada amostra desde a coleta até a quantificação e determinação dos elementos estáveis e dos radionuclídeos.

FIGURA 4 – Pontos de Anomalias Radiativas no Planalto de Poços de Caldas
(fonte: Google Maps, 2011)

FIGURA 5 – Fluxograma geral da parte experimental

Foram coletadas 24 amostras de cogumelos silvestres encontradas em locais distintos na região do Planalto de Poços de Caldas, entre novembro de 2008 e novembro de 2010. A coleta das amostras foi realizada apenas em locais onde havia quantidade suficiente de cogumelo para a realização das diversas determinações pretendidas (quantidade mínima de 10 g). Desta forma, os pontos de amostragem variaram de acordo com a disponibilidade de amostra encontrada.

No local de cada amostragem foram marcadas as coordenadas usando um Sistema de Posicionamento Global (GPS) e realizou-se também a medição da taxa de exposição externa no local usando um detector Geiger-Muller.

As amostras de cogumelos foram coletadas com auxílio de espátulas e em seguida foram armazenadas em sacos plásticos. Uma parte da amostra de cogumelo foi separada, congelada e enviada para identificação, segundo gênero e espécie no Departamento de Botânica do Instituto de Biociências da Universidade Estadual Paulista, Campus de Rio Claro.

Nos mesmos pontos de coleta das amostras de cogumelo foram coletadas amostras de solo de até aproximadamente 20 cm da superfície. Foram coletados cerca de 0,5 kg de solo, que foram armazenados em potes plásticos, para análise dos mesmos radionuclídeos e elementos determinados nos cogumelos.

Os pontos de amostragem foram subdivididos em grupos apresentados na TAB. 3.

TABELA 3 – Pontos de Amostragem dos Cogumelos e dos Solos

Grupos	Amostras	Local (aproximado)
I	1	Sítio Coroado – Caldas
II	2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9 e 10	Laboratório de Poços de Caldas (CNEN/LAPOC) - Campo do Agostinho
III	11	Morro do Ferro
IV	12	Indústria Nucleares do Brasil (INB)
V	13, 14, 15 e 16	Santuário Mariano Schoenstatt
VI	17, 18, 19, 20, 21 e 22	Zona urbana Poços de Caldas
VII	23 e 24	Pedra Balão - Poços de Caldas
VIII	25, 26, 27, 28 e 29	Zona urbana da Região de São Paulo

A maioria das amostras de cogumelos e de solos foi coletada na região rural de Poços de Caldas, excetuando-se as amostras dos grupos VI e VIII.

Das 24 amostras coletadas no Planalto de Poços de Caldas, 6 foram coletadas em área urbana e 18 em áreas rurais. Para comparar os valores de concentração ou de atividades na região de elevada radioatividade natural, foram analisadas também cinco amostras de cogumelos silvestres coletadas na região de São Paulo, sendo esta considerada de baixa radiação de fundo, avaliando-se a radioatividade natural da mesma. Neste caso, foram coletadas somente amostras de cogumelos.

Vale ressaltar que os grupos II e III foram pontos de amostragem localizados próximos às regiões que apresentam anomalias radioativas naturais, conhecidas como Campo do Agostinho e Morro do Ferro, respectivamente.

No Planalto de Poços de Caldas são conhecidos quarenta e oito locais de mineralizações radioativas (incluindo depósitos e simples ocorrências), os quais podem ser agrupados em três associações distintas, de acordo com a

paragênese mineral: urânio-zircônio (U-Zr), tório-terras raras (Th-TR) e urânio-molibdênio (U-Mo).

A associação urânio-zircônio constitui-se nos depósitos mais comuns e freqüentes, mas não tem importância econômica. A associação tório-terras raras constitui-se no segundo tipo de mineralização radioativa encontrada na área, representada principalmente pela jazida de Morro do Ferro, na parte central do planalto. A associação urânio-molibdênio constitui-se nos depósitos uraníferos mais importantes, representados principalmente pela jazida de Campo do Agostinho (próximo das instalações do Laboratório de Poços de Caldas – LAPOC) e pela mina Usamu Tsumi, na parte centro-sudeste do planalto (Câmara et al., 1998).

Na FIG. 6 é apresentada a amostra de cogumelo coletada no primeiro ponto de amostragem do grupo I.

FIGURA 6 – Amostra de Cogumelo

O minério do Morro do Ferro apresenta alta complexidade mineralógica e um teor de tório muito elevado. Este mineral é rico em terras raras, mas devido à grande quantidade de tório presente (4,9% ThO₂), a radioatividade acaba sendo um inibidor à sua comercialização (Lapido-Loureiro, 1994).

A exposição do corpo humano às radiações ionizantes pode ocasionar efeitos biológicos que podem ser revelados através de sintomas clínicos ou serem assintomáticos. A natureza, o grau de severidade e o tempo para manifestação de sintomas dependem da quantidade de radiação absorvida e também da taxa na qual é absorvida (Tauhata & Almeida, 1990).

Com a finalidade de verificar a dose de radiação em cada ponto de coleta, realizou-se a medida das taxas de dose de radiação, Geiger Muller.

A FIG. 7 apresenta o mapa com os 24 pontos de amostragem no Planalto de Poços de Caldas. A FIG. 8 apresenta dados radiométricos do Planalto de Poços de Caldas coletados pela CNEN.

FIGURA 7 – Pontos de Amostragem no Planalto de Poços de Caldas

FIGURA 8 – Mapa de intensidade radioativa total do planalto de Poços de Caldas
(fonte: Nuclebrás, 1975)

A TAB. 4 apresenta as medições das taxas de exposição externa em cada um dos pontos de coleta, juntamente com a identificação das espécies das amostras de cogumelos.

TABELA 4 – Taxa de exposição externa nos pontos de coletas e identificação das espécies das amostras

Grupo	Amostra	Taxa de Exposição Externa ($\mu\text{Sv.h}^{-1}$)	Espécie	Local de Coleta
I	1	0,30	<i>Hypomyces hyalinus</i>	Rural
	2	0,80	<i>Scleroderma cepa</i>	
	3	0,53	<i>Tricholoma aurantium</i>	
	4	0,45	<i>Tricholoma aurantium</i>	
	5	0,70	<i>Boletus appendiculatus</i>	
II	6	7,20	<i>Boletus appendiculatus</i>	Rural
	7	0,45	<i>Mycena galericulata</i>	
	8	0,39	<i>Boletus appendiculatus</i>	
	9	0,54	<i>Boletus appendiculatus</i>	
	10	0,80	<i>Boletus appendiculatus</i>	
III	11	8,31	<i>Camarops petersii</i>	Rural
IV	12	0,75	<i>Tricholoma orirubens</i>	Rural
V	13	0,45	<i>Mycena acícula</i>	Rural
	14	0,70	<i>Fomitopsis pinicola</i>	
	15	0,91	<i>Fistulina hepatica</i>	
	16	0,46	<i>Fomitopsis cajanderi</i>	
VI	17	0,44	<i>Agaricus Augustus</i>	Urbano
	18	0,45	<i>Mycena strobilinoideis</i>	
	19	0,33	<i>Lenzites betulina</i>	
	20	0,70	<i>Scleroderma geaster</i>	
	21	0,35	<i>Mycena haematopus</i>	
	22	0,27	<i>Tremiscus helvelloides</i>	
VII	23	0,98	<i>Boletus edulis</i>	Rural
	24	0,65	<i>Mycena delicatella</i>	
VIII	25	nd	<i>Auricularia Polytricha</i>	Urbano
	26	nd	<i>Fomitopsis sp</i>	
	27	nd	<i>Auricularia Polytricha</i>	
	28	nd	<i>Auricularia Polytricha</i>	
	29	nd	<i>Fomitopsis sp</i>	

nd: não determinado

As medições das taxas de exposição externa em cada um dos pontos de coletas estão também apresentadas na FIG. 9 abaixo.

FIGURA 9 – Taxa de exposição externa nos pontos de coletas das amostras

Ao observar os resultados das taxas de dose pode-se destacar os pontos 6 e 11, onde estão localizados o Morro do Ferro e o Campo do Agostinho, respectivamente, locais de destaque na região que apresentam anomalias radioativas, já citados anteriormente.

3.2 Preparação das amostras de cogumelos e de solo

Primeiramente, as amostras de cogumelos foram lavadas com água corrente. Em seguida, foram deixadas imersas em água deionizada por aproximadamente 1 hora e depois secas à temperatura ambiente. As amostras foram pesadas e depois levadas para secagem em estufa com temperatura controlada de 85°C por 24 horas. Pesou-se novamente, para determinação de umidade. As amostras de solo foram apenas pesadas, secas em estufas a 85 °C por 24 horas e pesadas novamente para determinação do teor de umidade.

Os valores do teor de umidade obtidos para cada uma das amostras de cogumelo e solo são apresentados na TAB. 5.

TABELA 5 – Determinação do teor de umidade nas amostras de cogumelo e solo

Amostra	Unidade Cogumelo (%)	Unidade Solo (%)
1	87,3	25,8
2	70,8	22,1
3	87,3	25,2
4	79,0	21,3
5	90,7	35,9
6	93,9	31,2
7	51,9	16,4
8	93,4	19,0
9	92,5	31,3
10	88,4	24,2
11	51,9	16,4
12	89,4	19,7
13	94,2	33,5
14	78,5	25,2
15	90,9	36,6
16	93,3	25,2
17	93,4	19,0
18	93,1	36,3
19	81,3	14,6
20	39,2	27,0
21	55,2	36,1
22	67,5	49,3
23	91,9	39,3
24	89,5	41,3
25	67,2	-
26	88,5	-
27	74,3	-
28	84,0	-
29	68,5	-

(-) não foram realizadas a coletas de solo nas amostragens do grupo VIII.

A partir dos valores obtidos, pode-se observar que a maioria das amostras de cogumelos coletadas é composta basicamente por água, apresentando teor de umidade entre 70 e 94%, sendo que seis amostras apresentaram teor de umidade abaixo de 60%. O teor de umidade pode interferir diretamente na concentração dos elementos e dos radionuclídeos nas amostras, de acordo com as características de solubilidade dos mesmos. Os solos apresentaram maior quantidade de matéria seca, havendo uma variação entre 14,6 e 49,3% de umidade.

Após a etapa de determinação do teor de umidade, as amostras de cogumelos e de solos foram pulverizadas e homogeneizadas em moinho de ágata e micropulverizador da Fritsch Pulverisette. Em seguida, foram peneiradas usando peneira de cobre de abertura 0,149 mm e tyler de 100 mesh da Granetest e armazenadas em recipientes plásticos para análises futuras.

3.3 Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental

3.3.1- Preparação das Amostras de Cogumelo e de Solo

Cerca de 100 mg das amostras de solo e 150 mg das amostras de cogumelo, ambas pulverizadas, foram pesadas e seladas em recipientes de plástico, previamente desmineralizados com água deionizada e solução de ácido nítrico PA diluído.

3.3.2- Preparação dos padrões sintéticos dos elementos de interesse

Os padrões dos elementos As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, Th, U e Zn foram preparados a partir de solução padrão da marca SPEX CERTIPREP, e após as diluições apropriadas, foram pipetados em filtro de papel Whatman 40 e secos sob lâmpada de infravermelho ou em temperatura ambiente, de acordo com o elemento. Após a secagem, as tiras de papel filtro foram acondicionadas em sacos plásticos limpos e desmineralizados, da mesma forma que as amostras.

3.3.3- Irradiação das amostras e dos padrões

As amostras, juntamente com padrões dos elementos, foram irradiadas por 10 segundos em fluxo de nêutrons da ordem de $6,6 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$, em sistema pneumático do reator nuclear de pesquisa IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP para a determinação de K, Mn e Na. Para a determinação dos outros elementos, as amostras e os padrões foram irradiados por 8 horas em fluxos de nêutrons entre $3,5$ e $5,5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$. As amostras de cogumelo e de solo foram irradiadas com os respectivos padrões sintéticos e materiais de referência em diferentes recipientes de irradiação.

3.3.4- Medições das Atividades

As medições das atividades emitidas pelos radioisótopos produzidos na irradiação das amostras e dos padrões foram realizadas em um detector gama de

germânio hiperpuro (HPGe) - Modelo POP TOP da EG&G ORTEC com resolução de 1,90 keV para o fotopico 1332 keV do ^{60}Co e eficiência relativa de 20%. Ao detector estavam acoplados um analisador multicanal, uma eletrônica associada e um microcomputador. Os espectros foram analisados utilizando-se o programa VISPECT 2, que fornece as energias da radiação gama dos radioisótopos de interesse e as respectivas áreas dos picos. A FIG. 10 apresenta o sistema de espectrometria de contagem gama para amostras irradiadas no IPEN / CNEN-SP.

FIGURA 10 – Sistema de Espectrometria Gama do LAN-IPEN

3.4 Espectrometria Gama

3.4.1- Preparação das Amostras de Solo

As amostras de solo peneiradas foram seladas em potes redondos de acrílico de 60 mm de diâmetro e 20 mm de altura com tampa e armazenadas por

trinta dias, tempo necessário para assegurar o equilíbrio radioativo entre o ^{226}Ra e seus filhos ^{214}Pb e ^{214}Bi . Esse equilíbrio é necessário, já que a energia direta dos raios gama do ^{226}Ra ($E = 186,1 \text{ KeV}$) é bastante próxima à do ^{235}U ($E = 185,7 \text{ KeV}$), dificultando a discriminação desse radionuclídeo nas condições de medidas do laboratório.

3.4.2- Equipamento

Foi utilizado um sistema de Espectrometria Gama Canberra modelo GX4510 com detector HPGe (eficiência relativa de 45%), cilíndrico com contato tipo P e software Genie 2000 para aquisição e tratamento dos dados.

A FIG. 11 apresenta o Espectrômetro Gama no Laboratório de Poços de Caldas (LAPOC).

FIGURA 11 – Espectrômetro Gama do LAPOC

3.4.3- Calibração do Equipamento – Espectrômetro Gama

Para a calibração de energia foram utilizadas fontes pontuais de ^{152}Eu e de ^{210}Pb certificadas pela Amersham e fornecidas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD/CNEN-RJ) e, para a calibração da eficiência, foram utilizadas soluções padrões dos mesmos isótopos, da mesma procedência, com atividade total de 51,78 Bq de ^{152}Eu e 22,36 Bq de ^{210}Pb , adicionados em alumina suprapur. Essa alumina foi acondicionada em potes de acrílico, para ser analisada no espectrômetro gama. O ^{152}Eu possui fotopicos bem definidos a partir de 122 KeV e o ^{210}Pb apresenta um fotopico em 46,5 KeV, possibilitando assim a calibração e conseqüentemente a determinação dos radionuclídeos emissores gama em toda faixa útil de análise do equipamento.

3.4.4- Determinação dos Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de solo

Os fotopicos utilizados para determinação de ^{226}Ra foram 609 keV e 1020 keV do ^{214}Bi e 352 keV do ^{214}Pb (ver TAB. 1). Para a determinação do ^{228}Ra foi utilizado o fotopico de 911 keV do seu filho ^{228}Ac , pois o ^{228}Ra não é um emissor gama (ver TAB. 2). Para a determinação do ^{210}Pb foi utilizado o seu fotopico de raio-X característico em 46,5 keV (ver TAB. 1) e a correção de auto-absorção foi realizada de acordo com o procedimento proposto por Cutshall *et al.* (1983), no qual um feixe de raio γ é atenuado. Calculou-se o fator de correção relacionando o valor de auto-absorção para o padrão e o valor de auto-absorção

para a amostra. O resultado foi obtido pela multiplicação do fator pela atividade inicialmente medida.

Na FIG. 13 é apresentado um fluxograma com o processo de análise por Espectrometria Gama dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb .

FIGURA 12 – Fluxograma da Análise por Espectrometria Gama

3.5 Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total

3.5.1- Preparação das Amostras de Cogumelo

As amostras de cogumelos peneiradas foram pesadas (aproximadamente 5 g) e levadas para calcinação a 450 °C durante 24 horas. Após a calcinação, as amostras sofreram ataque com ácido nítrico, perclórico e fluorídrico até a dissolução completa e retomadas com ácido nítrico 8 M. Reservou-se uma alíquota da amostra para determinação dos isótopos de tório.

3.5.2- Separação Radioquímica

À alíquota da solução ácida restante, acrescentou-se água deionizada até completar um volume de 1000 mL. Adicionou-se carreador de Pb^{2+} (20 mg.mL⁻¹) e Ba^{2+} (20 mg.mL⁻¹) e ácido cítrico. Em seguida, adicionou-se algumas gotas de indicador alaranjado de metila e NH_4OH , até a viragem para o meio básico (pH 4,5 a 5,0). Os carreadores de Pb e Ba são adicionados para aumentar a concentração desses elementos na solução para atingir o ponto de solubilidade e o ácido cítrico complexa Pb e Fe presentes nas amostras, para que não sejam precipitados após adição do NH_4OH .

Adicionou-se H_2SO_4 3M, para precipitar os íons como sulfatos. Após decantar, descartou-se o sobrenadante e ao precipitado adicionou-se ácido nitrilotriacético, conhecido comercialmente como TITRIPLEX, juntamente com solução de NaOH 6 M, água deionizada e algumas gotas de indicador vermelho de metila. Após completa dissolução, adicionou-se $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 25 mg.mL⁻¹ e precipitou-se o bário e o rádio com ácido acético glacial, deixando o chumbo complexado em solução. Separou-se o sobrenadante para análise do chumbo.

O precipitado foi lavado com solução de acetato de amônio 40%, e adicionado ao sobrenadante, de modo a complexar qualquer chumbo que ainda estivesse absorvido no precipitado. Ao precipitado adicionaram-se ácido etilenodiaminotetracético (EDTA), água deionizada e NH_4OH , duas a três gotas de indicador vermelho de metila e aqueceu-se até completa dissolução do precipitado.

Adicionou-se $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 25 mg.mL⁻¹ e precipitou-se o rádio após adição de ácido acético glacial, como $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$. O precipitado foi filtrado em papel de filtro

de membrana Millipore 0,45 μm . Armazenou-se o filtro por 30 dias, para esperar o equilíbrio radioativo.

Ao sobrenadante, contendo o ^{210}Pb separado anteriormente, foi adicionado Na_2S 1 M, para precipitar o chumbo na forma de sulfeto. Adicionou-se HNO_3 5 M e levou-se a chapa aquecedora até dissolver o sulfeto com formação de enxofre, onde enxofre elementar é formado e o chumbo permanece em solução. Seguiu-se o aquecimento até secar, e em seguida foram adicionados água deionizada, acetato de amônio 40% e solução de Na_2CrO_4 30% para precipitar o chumbo como PbCrO_4 . As amostras foram armazenadas por 30 dias após a precipitação.

3.5.3- Equipamento

As contagens alfa e beta totais das amostras foram realizadas em um contador proporcional de fluxo gasoso de ultrabaixo background Modelo S5-XLB Tennelec Canberra. A FIG. 13 apresenta o contador proporcional de fluxo gasoso do LAPOC.

O gás utilizado no detector é o gás P-10, uma mistura de 90% de argônio e 10% de metano. As partículas carregadas, alfa e beta, interagem no meio gasoso por ionização das moléculas, onde se aplica alta tensão, levando-se a formação de íons que produzem sinal elétrico na saída do detector.

FIGURA 13 – Contador Proporcional de Fluxo Gasoso do LAPOC

3.5.4- Calibração do Equipamento – Contador Proporcional de Fluxo Gasoso

Para a calibração da eficiência de contagem foram utilizados padrões preparados a partir de solução fornecidos pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD/CNEN-RJ) de atividades conhecidas de ^{226}Ra e ^{228}Ra . As condições de contagens das amostras foram estabelecidas pela contagem dos padrões. Assim, durante as medições, foram utilizados padrões de calibração de

^{241}Am para contagem alfa, $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ para contagens beta. O levantamento de radiação de fundo foi realizado diariamente.

3.5.5- Determinação dos Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de cogumelos

A determinação do ^{210}Pb foi realizada através do ^{210}Bi da série natural do urânio (ver TAB. 1), com mesma emissão radioativa beta, entretanto de meia vida curta. O ^{226}Ra foi determinado através do ^{222}Rn , que por sua vez também é da série natural do urânio, com mesma emissão radioativa alfa (ver TAB. 1). Já a determinação do ^{228}Ra foi estabelecida através de seu filho ^{228}Ac com mesma emissão radioativa beta, porém de meia vida curta (ver TAB. 2).

As FIGs. 14 e 15 apresentam os fluxogramas da separação radioquímica seguida de precipitação e coprecipitação e contagem dos emissores Alfa e Beta Total para determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb .

FIGURA 14 – Fluxograma da Separação Radioquímica de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb

FIGURA 15 – Fluxograma da Precipitação e Co-precipitação do Ra e Pb

3.6 Separação Radioquímica e Contagem por Espectrometria Alfa

3.6.1- Preparação das Amostras de Cogumelos

As amostras de cogumelo utilizadas para esta quantificação foram as reservadas em meio HNO_3 8M na abertura para separação radioquímica e

quantificação em contador proporcional de fluxo gasoso. Adicionou-se traçador de ^{229}Th , que é um radionuclídeo artificial utilizado para determinar a recuperação química do elemento analisado. A boa recuperação química dos traçadores, durante a análise (considerado acima de 50% neste trabalho), indica que os mesmos desempenharam sua função, exercendo o importante papel de mapear o caminho durante a separação dos radionuclídeos.

3.6.2- Separação dos Isótopos de Tório nas Amostras de Cogumelo

A separação do Th foi feita por resina de troca aniônica Dowex 1x2, pré condicionada com ácido nítrico 8 M. Percolou-se a solução ácida da amostra na resina e em seguida o tório foi eluído com ácido clorídrico concentrado. A solução eluída foi seca em chapa aquecedora e retomada com ácido sulfúrico concentrado, sulfeto de sódio 0,3 M e água deionizada.

3.6.3- Eletrodeposição

O Th da solução final foi eletrodepositado em plaquetas de prata, previamente polidas sob corrente elétrica de 1,0 A e 10 volts, durante 60 minutos. Na FIG. 16 é apresentado o esquema de eletrodeposição do tório em plaquetas de prata nas células de eletrodeposição.

FIGURA 16 – Célula de eletrodeposição

3.6.4- Equipamento

A quantificação dos isótopos de tório foi realizada por Espectrometria Alfa em equipamento modelo Alpha Analyst da Canberra Industries, com detectores de barreira de superfície PIPS (Passivated Implanted Planar Silicon), de 450 mm² de área ativa, 18 keV (FWHM) de resolução, eficiência de contagem de 17- 19% para uma distância fonte-detector de 0,5 cm, calibrado para energia de 3 a 10 MeV.

Na FIG. 17 é apresentado o Espectrômetro Alfa usado na quantificação dos isótopos de tório no LAPOC.

FIGURA 17 – Espectrômetro Alfa do LAPOC

3.6.5- Calibração do Equipamento – Espectrômetro Alfa

Para a calibração de energia e eficiência de contagem no Espectrofotômetro Alfa foi utilizada uma fonte padronizada eletrodepositada contendo 1,602 Bq de ^{238}U , 1,573 Bq de ^{234}U , 1,685 Bq ^{239}Pu e 1,647 Bq de ^{241}Am , certificada pela Analytics Inc. Modelo SRS 63997-121.

3.6.6- Determinação dos Isótopos de Tório

Foi utilizado o software Genie 2000 da Canberra para a aquisição e tratamento dos dados após a contagem dos isótopos de tório nas amostras de

cogumelo no sistema de Espectrometria Alfa. Para a quantificação do tório, as amostras foram contadas durante 200.000 segundos nas energias 5,43 MeV para ^{228}Th , 4,84 MeV para o traçador ^{229}Th , 4,68 MeV para ^{230}Th e 4,01 MeV para ^{232}Th (ver TAB. 1 e 2).

Na FIG. 18 é apresentado o fluxograma da separação por troca iônica dos isótopos de Th e quantificação por Espectrometria Alfa.

FIGURA 18 – Fluxograma da separação e quantificação dos isótopos de Th

CAPÍTULO 4

RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste capítulo serão descritos os resultados obtidos nos procedimentos analíticos aplicados para validação das metodologias, análise dos cogumelos e seus respectivos solos, fator de transferência e comparação dos resultados obtidos com os resultados das amostras coletadas na região considerada de baixo BG.

O critério de coleta estabelecido neste trabalho variou de acordo com a disponibilidade das amostras, visto que algumas dificuldades foram encontradas durante a amostragem, como a quantidade de algumas espécies era consideravelmente pequena e apresentava pouca massa. Desta forma, fez-se necessário usar a amostra por completo para análises, sem separar as partes como talo e chapéu dos cogumelos.

A validação das metodologias foi feita por meio das análises de materiais de referência certificados, para verificar a confiabilidade, rastreabilidade e comparabilidade dos métodos utilizados.

A precisão apresentada pelos resultados é a capacidade do método aplicado repetir o mesmo resultado, sendo esta avaliada por meio de cálculo de desvio padrão relativo. Já a exatidão ou veracidade indica a concordância entre os resultados obtidos comparando-os com os valores de um material de referência certificado, sendo esta avaliada pelo resultado do erro relativo em porcentagem (Cienfuegos, 2005).

Os resultados analíticos dos materiais de referência também podem ser avaliados pelos valores de z-score, ou ainda pela chamada diferença

padronizada, onde se atribui uma nota (score) relativa, comparando diferentes resultados. Assim, um valor de z-score perto de zero seria o ideal, pois implica que está próximo ao valor certificado. Valores em módulos maiores que três são considerados dispersos. Os valores de z-score foram calculados usando a equação (11) (IAEA, 2001).

$$z\text{-score} = (C_i - C_{i\text{ ref}}) / (\sigma_i^2 + \sigma_{i\text{ ref}}^2)^{1/2} \quad (11)$$

Onde:

C_i – valor médio das determinações do elemento i obtido na análise do material de referência;

$C_{i\text{ ref}}$ – valor certificado para o elemento i ;

σ_i – valor do desvio padrão nas determinações obtidas para o elemento i na análise do material de referência certificado;

$\sigma_{i\text{ ref}}$ – valor da incerteza fornecido no certificado para o elemento i .

Limite de Detecção (LD) é a menor concentração de um determinado elemento na amostra, que pode ser detectado qualitativamente, isto é, não ser exatamente quantificado (Cienfuegos, 2005).

O LD dos elementos presentes nas amostras analisadas por INAA foram calculados, segundo a União Internacional de Química Pura e Aplicada (IUPAC), relacionando o BG (radiação de fundo) e o tempo vivo de medição (Live Time – LT), baseando-se na equação (12) (Currie, 1999):

$$LD = (3 \times BG^{1/2}) / LT \quad (12)$$

O parâmetro que melhor descreve a interação solo-matéria orgânica é o Fator de Transferência (FT). Esse fator é calculado levando em consideração o conteúdo total do radionuclídeo ou elemento presente na matéria orgânica (A_m = atividade ou concentração na matéria orgânica em peso seco) com o conteúdo total do radionuclídeo ou elemento presente nos primeiros 20 cm do solo (A_s = atividade ou concentração no solo em peso seco), de acordo com a equação (13):

$$FT = A_m.A_s^{-1} \quad (13)$$

Os valores de transferência podem ser convertidos em valores de transferência específicos para um determinado tipo de matéria orgânica. No caso dos radionuclídeos, esses valores podem então ser aplicados regionalmente para fomentar parâmetros para cálculo de dose e serem aplicados aos modelos de avaliação de risco radiológico de uma determinada região (Wasserman et al., 2002).

4.1 Análise por Ativação com Nêutrons Instrumental

A Análise por Ativação Neutrônica Instrumental (INAA) é muito empregada devido à sua sensibilidade e exatidão dos resultados. Neste trabalho aplicou-se INAA para a determinação de As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, U, Th e Zn. Os elementos K, Mn e Na, que apresentam meias vidas curtas, foram determinados após irradiação curta, realizada em sistema pneumático do reator

de pesquisa IEA-R1 do IPEN/CNEN-SP. Os outros elementos, que apresentam meias vidas intermediárias ou longas, foram determinados após irradiação longa, onde as amostras, juntamente com os padrões, são submetidas a um fluxo de nêutrons por um período de tempo mais longo, em posições de irradiação mais próximas ao núcleo do reator.

4.1.1- Validação da INAA

A INAA foi validada com relação à exatidão e precisão através de análise dos seguintes materiais de referência:

- INCT-MPH-2 Mixed Polish Herbs do Instituto de Tecnologia e Química Nuclear da Polônia – usado como controle para as amostras de cogumelo (INCT, 2002).
- IAEA-Mushroom da Agência Internacional de Energia Atômica – usado também como controle para as amostras de cogumelo (Motrenko & Rossbach, 2007).
- RM 8704 – Buffalo River Sediment do Instituto Nacional de Tecnologia e Padrões (NIST) dos Estados Unidos da América – usado como controle para as amostras de solo (NIST, 2008).

As TAB. 6, 7 e 8 apresentam as concentrações médias, erro relativo e z-score, obtidos para os Materiais de Referências INCT-MPH-2, IAEA-Mushroom e RM 8704 - Buffalo River Sediment, respectivamente.

TABELA 6 – Concentrações dos elementos determinados no Material de Referência INCT- MPH2 por INAA

Elemento	Média ± DP ^a	Valor Certificado ± U	Erro Relativo (%)	z-score
As (mg.kg ⁻¹)	0,172 ± 0,027	0,191 ± 0,023	9,9	-0,65
Co (mg.kg ⁻¹)	0,206 ± 0,018	0,210 ± 0,025	1,9	-0,18
Cr (mg.kg ⁻¹)	1,57 ± 0,13	1,69 ± 0,13	7,1	- 0,83
Cs (mg.kg ⁻¹)	0,074 ± 0,009	0,076 ± 0,007	2,6	-0,21
Fe (mg.kg ⁻¹)	473 ± 41	(460) [*]	-	-
K (%)	2,04 ± 0,35	1,91 ± 0,12	6,8	0,37
La (mg.kg ⁻¹)	0,518 ± 0,052	0,571 ± 0,046	9,3	-0,93
Mn (mg.kg ⁻¹)	209 ± 38	191 ± 12	9,4	0,47
Na (mg.kg ⁻¹)	308 ± 54	(350) [*]	-	-
Sc (mg.kg ⁻¹)	0,114 ± 0,002	0,123 ± 0,009	7,3	-1,83
Th (mg.kg ⁻¹)	0,155 ± 0,023	0,154 ± 0,013	0,6	0,04
U (mg.kg ⁻¹)	0,052 ± 0,005	(0,049) [*]	-	-
Zn (mg.kg ⁻¹)	30,2 ± 1,9	33,5 ± 2,1	9,9	-1,52

(^{*}) Valor informativo pelo certificado

a: média e desvio padrão de 8 determinações

TABELA 7 – Concentrações dos elementos determinados no Material de Referência IAEA-Mushroom por INAA

Elemento	Média ± DP ^a	Valor Certificado ± U	Erro Relativo (%)	z-score
As (mg.kg ⁻¹)	0,405 ± 0,032	0,417 ± 0,057	2,9	-0,28
Co (mg.kg ⁻¹)	0,047 ± 0,003	0,045 ± 0,003	4,4	0,60
Cr (mg.kg ⁻¹)	1,32 ± 0,12	1,25 ± 0,44	5,6	0,28
K (mg.kg ⁻¹)	32495 ± 2043	35403 ± 2000	8,2	-1,28
Mn (mg.kg ⁻¹)	16,61 ± 0,33	16,89 ± 1,35	1,7	-0,37
Na (mg.kg ⁻¹)	342 ± 39	379 ± 24	9,8	-0,91
U (mg.kg ⁻¹)	0,31 ± 0,05	0,34 ± 0,05	8,8	-0,54

a: média e desvio padrão de 5 determinações

TABELA 8 – Concentrações médias dos elementos determinados no Material de Referência RM 8704 por INAA

Elemento	Média ± DP ^a	Valor Certificado ± U	Erro Relativo (%)	z-score
As (mg.kg ⁻¹)	16 ± 2	(17)*	-	-
Co (mg.kg ⁻¹)	12,97 ± 0,62	13,57 ± 0,43	4,4	-0,91
Cr (mg.kg ⁻¹)	111,2 ± 12,3	121,9 ± 3,8	8,8	-0,87
Cs (mg.kg ⁻¹)	5,66 ± 0,72	5,83 ± 0,12	2,9	-0,14
Fe (mg.kg ⁻¹)	3,83 ± 0,21	3,97 ± 0,10	3,5	-0,79
K (%)	2,172 ± 0,141	2,001 ± 0,041	8,5	1,20
Mn (mg.kg ⁻¹)	541 ± 55	544 ± 21	0,6	-0,05
Na (mg.kg ⁻¹)	0,499 ± 0,098	0,553 ± 0,015	9,8	-0,55
Sc (mg.kg ⁻¹)	10,7 ± 0,7	11,26 ± 0,20	5,0	-0,79
Th (mg.kg ⁻¹)	8,72 ± 2,05	9,07 ± 0,16	3,9	-0,03
U (mg.kg ⁻¹)	3,12 ± 0,40	3,09 ± 0,13	1,0	0,07
Zn (mg.kg ⁻¹)	368 ± 35	408 ± 15	9,8	-1,12

(*) Valor informativo pelo certificado

a: média e desvio padrão de 11 determinações

Na FIG. 19 os valores de z-score são representados graficamente para cada um dos Materiais de Referência para avaliar a INAA.

Os valores de z-score estiveram todos entre $|z| < 2$, mostrando que os valores obtidos para os elementos determinados nos três Materias de Referência foram concordantes com os valores certificados.

FIGURA 19 – Valores de z-score nos Materiais de Referência por INAA

4.1.2- Cálculo do Limite de Detecção - INAA

Os valores de Limite de Detecção (LD) na INAA foram calculados segundo a IUPAC (Currie, 1999). Na TAB. 13 são apresentados os valores de LD para INAA de cada um dos elementos avaliados no presente estudo.

TABELA 9 – Limites de Detecção na INAA

Elemento	Limite de Detecção (LD)
As (mg.kg⁻¹)	0,03
Co (mg.kg⁻¹)	0,02
Cr (mg.kg⁻¹)	0,01
Cs (mg.kg⁻¹)	0,04
Fe (%)	0,01
K (%)	0,12
La (mg.kg⁻¹)	0,05
Mn (mg.kg⁻¹)	4,30
Na (mg.kg⁻¹)	1,10
Sc (mg.kg⁻¹)	0,04
Th (mg.kg⁻¹)	0,11
U (mg.kg⁻¹)	0,14
Zn (mg.kg⁻¹)	7,10

4.1.3- Resultados da INAA

Os resultados obtidos nas determinações de As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc, Th, U e Zn por Análise por Ativação com Nêutrons são apresentados nas TAB. 9 e 10, para as análises de cogumelos e seus solos, respectivamente. São apresentados os valores das médias para duas determinações e os seus desvios padrões.

TABELA 10 – Concentrações médias dos elementos determinados nas amostras de cogumelos por INAA

Am.	As	Co	Cr	Cs	La	Mn	Na	Sc	Th	U	Zn	Fe	K
	(mg.kg ⁻¹)											%	
1	0,8 ± 0,3	7,6 ± 0,2	28 ± 2	0,5 ± 0,1	133 ± 4	254 ± 14	nd	10 ± 1	7 ± 1	< 0,14	203 ± 7	3,75 ± 0,06	3,0 ± 0,8
2	0,7 ± 0,5	0,39 ± 0,01	4 ± 1	0,70 ± 0,03	4,1 ± 0,2	67 ± 5	20 ± 1	0,25 ± 0,01	4,6 ± 0,2	1,4 ± 0,1	nd	0,25 ± 0,01	1,7 ± 0,3
3	< 0,03	2,2 ± 0,2	2,5 ± 0,4	0,58 ± 0,03	3,57 ± 0,15	42 ± 1	66 ± 5	1,8 ± 0,1	1,69 ± 0,02	6,0 ± 0,1	75 ± 6	0,117 ± 0,002	1,4 ± 0,2
4	< 0,03	23 ± 2	5 ± 1	nd	1,56 ± 0,02	87 ± 1	33 ± 4	9 ± 1	0,6 ± 0,1	30 ± 11	9 ± 1	0,66 ± 0,01	0,45 ± 0,03
5	nd	nd	nd	nd	nd	700 ± 52	1,7 ± 0,2	nd	nd	nd	nd	nd	0,82 ± 0,04
6	< 0,03	nd	4,3 ± 0,3	< 0,04	12 ± 1	274 ± 15	51 ± 12	0,10 ± 0,01	1,8 ± 0,1	162 ± 7	< 7,10	1,7 ± 0,3	0,4 ± 0,1
7	< 0,03	19 ± 1	17 ± 3	0,13 ± 0,03	0,59 ± 0,15	497 ± 13	1013 ± 221	12 ± 3	8 ± 1	nd	nd	0,43 ± 0,07	2,1 ± 0,2
8	2,11 ± 0,05	0,78 ± 0,03	6,4 ± 0,1	nd	16,3 ± 0,4	327 ± 49	163 ± 35	1,0 ± 0,1	20,0 ± 0,3	3,1 ± 0,1	49 ± 2	0,87 ± 0,02	0,9 ± 0,2
9	< 0,03	nd	17 ± 1	1,8 ± 0,1	0,08 ± 0,01	21 ± 2	13 ± 3	11 ± 1	0,20 ± 0,02	6,4 ± 0,9	48 ± 8	1,4 ± 0,1	1,6 ± 0,2
10	0,29 ± 0,02	0,67 ± 0,01	22 ± 2	0,20 ± 0,02	4,3 ± 0,6	20 ± 1	110 ± 24	0,20 ± 0,03	1,9 ± 0,2	0,5 ± 0,1	298 ± 7	0,13 ± 0,01	3,5 ± 0,5
11	1,4 ± 0,2	1,35 ± 0,04	11,3 ± 0,6	nd	33 ± 2	1227 ± 35	127 ± 8	2,4 ± 0,1	17 ± 2	3,7 ± 0,3	64 ± 9	1,21 ± 0,01	0,9 ± 0,1
12	nd	3,3 ± 0,1	15 ± 1	1,42 ± 0,04	50,5 ± 0,4	405 ± 74	25 ± 4	2,10 ± 0,04	57 ± 3	10 ± 1	127 ± 2	3,39 ± 0,06	0,8 ± 0,1
13	9 ± 1	0,20 ± 0,04	16 ± 1	0,29 ± 0,04	186 ± 38	99 ± 5	28 ± 5	0,9 ± 0,1	9 ± 1	9,2 ± 0,4	142 ± 8	0,78 ± 0,02	2,4 ± 0,4
14	< 0,03	9,2 ± 0,6	7,1 ± 0,3	0,36 ± 0,02	0,7 ± 0,1	9 ± 1	2,6 ± 0,2	4,1 ± 0,2	0,10 ± 0,02	18 ± 2	40,5 ± 0,4	0,34 ± 0,03	1,87 ± 0,02
15	< 0,03	125 ± 10	19,4 ± 0,2	4,0 ± 0,1	< 0,05	23 ± 3	13 ± 1	13 ± 1	< 0,11	21 ± 1	57 ± 8	2,01 ± 0,06	1,5 ± 0,4
16	< 0,03	0,57 ± 0,04	24 ± 2	0,43 ± 0,08	1,28 ± 0,05	68,7 ± 0,3	35 ± 5	0,07 ± 0,01	0,55 ± 0,04	1,5 ± 0,1	70 ± 2	0,052 ± 0,001	1,4 ± 0,1
17	0,04 ± 0,02	0,15 ± 0,01	1,51 ± 0,02	0,06 ± 0,01	6,7 ± 0,4	42 ± 2	15 ± 3	0,011 ± 0,001	0,6 ± 0,1	0,16 ± 0,02	20 ± 3	0,02 ± 0,01	0,44 ± 0,04
18	< 0,03	nd	< 0,01	< 0,04	9 ± 1	180 ± 4	11 ± 2	8 ± 1	< 0,11	51 ± 7	80 ± 7	1,13 ± 0,01	1,8 ± 0,2
19	0,33 ± 0,03	0,14 ± 0,01	10 ± 2	0,16 ± 0,01	2,14 ± 0,07	7,1 ± 0,4	3,1 ± 0,5	0,018 ± 0,003	0,54 ± 0,03	0,16 ± 0,01	40 ± 3	0,026 ± 0,001	0,69 ± 0,02
20	< 0,03	13,6 ± 0,1	6 ± 2	< 0,04	1,9 ± 0,6	69 ± 1	2,8 ± 0,1	5 ± 0,5	0,27 ± 0,01	5,4 ± 0,8	55 ± 5	0,51 ± 0,01	0,34 ± 0,01
21	< 0,03	14,9 ± 0,3	5,4 ± 0,5	< 0,04	6,5 ± 1,3	44 ± 8	23 ± 5	3 ± 1	0,11 ± 0,03	38 ± 16	56,2 ± 0,3	0,5 ± 0,2	1,4 ± 0,3
22	< 0,03	21,0 ± 0,1	0,06 ± 0,01	0,63 ± 0,02	< 0,05	32,8 ± 0,1	12 ± 2	4,1 ± 0,1	0,10 ± 0,02	6,4 ± 0,4	22 ± 5	0,33 ± 0,05	1,47 ± 0,03
23	< 0,03	26 ± 2	6,8 ± 0,6	0,9 ± 0,1	1,4 ± 0,2	93,4 ± 0,2	22 ± 4	4,3 ± 0,5	1,3 ± 0,2	6,0 ± 0,4	38,8 ± 0,1	0,42 ± 0,01	0,16 ± 0,02
24	< 0,03	75 ± 4	7 ± 2	3,6 ± 0,4	< 0,05	27 ± 1	21 ± 5	4,56 ± 0,01	0,5 ± 0,1	15,1 ± 0,7	80 ± 10	0,41 ± 0,05	2,3 ± 0,2

nd: não determinado

< limite de detecção

TABELA 11 – Concentrações médias dos elementos determinados nas amostras de solos por INAA

Am.	As	Co	Cr	Cs	La	Mn	Na	Sc	Th	U	Zn	Fe	K
	mg.kg ⁻¹											%	
1	1,4 ± 0,4	16,1 ± 0,1	48 ± 6	0,52 ± 0,07	212 ± 4	379 ± 5	93,4 ± 0,9	15 ± 0,2	13 ± 1	3,1 ± 0,7	198 ± 14	5,36 ± 0,05	nd
2	8,0 ± 0,2	1,6 ± 0,1	9,9 ± 0,2	0,67 ± 0,08	32 ± 1	444 ± 73	36,3 ± 6,5	2,3 ± 0,1	26,0 ± 0,2	9 ± 1	61,4 ± 0,4	2,86 ± 0,04	nd
3	11 ± 1	6 ± 1	26 ± 3	2,9 ± 0,1	105 ± 6	1856 ± 235	133 ± 30	6 ± 1	58 ± 2	19 ± 2	97 ± 28	5 ± 1	nd
4	9 ± 1	34,70 ± 0,01	22 ± 1	1,9 ± 0,1	104 ± 4	890 ± 88	< 1,10	5 ± 1	33 ± 3	38 ± 3	189 ± 3	3,5 ± 0,1	< 0,12
5	0,56 ± 0,03	34 ± 2	9 ± 1	0,49 ± 0,04	4,7 ± 0,4	1372 ± 299	208 ± 50	10 ± 1	33,94 ± 0,02	14 ± 3	195 ± 6	3,94 ± 0,01	1,5 ± 0,2
6	9 ± 1	47 ± 2	14 ± 4	3,9 ± 0,6	103 ± 10	1873 ± 230	263 ± 24	6 ± 1	nd	12 ± 2	11 ± 1	2,40 ± 0,01	1,3 ± 0,3
7	7,7 ± 0,6	37 ± 2	9,2 ± 0,2	1,2 ± 0,2	144 ± 6	3151 ± 170	5828 ± 66	nd	34 ± 1	37 ± 1	5,6 ± 0,5	0,9 ± 0,1	3,34 ± 0,02
8	8 ± 1	13,6 ± 0,4	13,45 ± 0,03	0,9 ± 0,1	72 ± 2	1261 ± 45	889 ± 61	2,1 ± 0,1	18,1 ± 0,4	19,3 ± 0,4	72 ± 9	1,6 ± 0,1	1,9 ± 0,2
9	8 ± 2	30 ± 1	45 ± 2	1,1 ± 0,3	68 ± 3	2341 ± 139	875 ± 149	nd	83,2 ± 8,3	18 ± 1	444 ± 10	4,99 ± 0,01	1,5 ± 0,1
10	2,6 ± 0,2	107 ± 3	116 ± 18	5,1 ± 0,2	93 ± 1	2050 ± 111	9536 ± 1769	23 ± 1	129,3 ± 5,6	47 ± 3	260 ± 21	8,8 ± 0,2	3,5 ± 0,3
11	< 0,03	2,24 ± 0,03	< 0,01	1,1 ± 0,2	889 ± 22	3617 ± 17	119 ± 15	2,0 ± 0,2	1026 ± 40	36 ± 6	289 ± 5	3,78 ± 0,06	5,07 ± 0,01
12	6,84 ± 0,03	7 ± 1	24 ± 4	1,3 ± 0,3	170 ± 18	1653 ± 312	158 ± 36	5 ± 1	53,1 ± 0,1	17 ± 3	186 ± 42	2,50 ± 0,05	1,07 ± 0,01
13	14,0 ± 0,3	3,1 ± 0,6	21,5 ± 0,1	1,1 ± 0,1	107 ± 1	2292 ± 63	153 ± 23	6,3 ± 0,2	29 ± 1	17 ± 3	138 ± 26	2,48 ± 0,03	nd
14	9 ± 2	13 ± 3	nd	0,9 ± 0,1	133 ± 1	480 ± 34	3381 ± 235	2,9 ± 0,4	7 ± 1	28 ± 2	nd	1,27 ± 0,03	1,6 ± 0,4
15	6,3 ± 0,8	78 ± 1	69 ± 17	5,6 ± 0,4	107 ± 9	2294 ± 179	252 ± 39	11,8 ± 0,1	243 ± 18	22,0 ± 0,1	412 ± 4	12,74 ± 0,01	1,0 ± 0,1
16	11 ± 1	5,6 ± 0,4	26 ± 3	2,9 ± 0,1	105 ± 6	1856 ± 235	133 ± 30	5,8 ± 0,7	58,0 ± 2,2	19,9 ± 0,3	117 ± 2	4,7 ± 0,3	nd
17	6,7 ± 0,3	7 ± 1	28 ± 1	1,6 ± 0,2	161 ± 10	1533 ± 338	124 ± 26	4,3 ± 0,4	54 ± 1	6 ± 1	260 ± 62	7 ± 1	0,9 ± 0,1
18	10,7 ± 0,3	6,3 ± 0,2	2,1 ± 0,3	1,7 ± 0,3	17 ± 3	2311 ± 458	168 ± 10	nd	9 ± 1	85,2 ± 0,1	14 ± 1	0,9 ± 0,1	nd
19	11 ± 1	12 ± 1	13 ± 2	0,97 ± 0,03	121 ± 7	625 ± 190	88 ± 18	4,0 ± 0,8	27 ± 3	17 ± 1	74 ± 11	3,4 ± 0,1	0,50 ± 0,01
20	9,22 ± 0,02	31 ± 1	45 ± 10	1,6 ± 0,1	81 ± 12	1392 ± 2	511 ± 22	3,9 ± 0,3	71 ± 5	21 ± 3	257 ± 44	2,8 ± 0,1	1,13 ± 0,01
21	3,3 ± 0,3	111 ± 2	40 ± 1	3,6 ± 0,1	125 ± 3	1174 ± 29	3445 ± 616	2,9 ± 0,7	51,2 ± 10,1	25 ± 3	217 ± 6	0,19 ± 0,01	2,4 ± 0,5
22	< 0,03	45 ± 2	40 ± 7	0,7 ± 0,1	185 ± 12	1826 ± 137	177 ± 23	4 ± 1	30,8 ± 0,5	6 ± 1	70 ± 10	8,2 ± 0,5	0,64 ± 0,02
23	2,8 ± 0,3	29 ± 2	7 ± 1	0,7 ± 0,2	69 ± 7	2598 ± 49	989 ± 50	nd	26,2 ± 0,3	15 ± 3	86 ± 6	3,2 ± 0,1	1,2 ± 0,3
24	6 ± 1	68 ± 11	99 ± 3	7 ± 2	79 ± 5	3060 ± 55	220 ± 49	14 ± 2	262 ± 34	19 ± 2	86 ± 17	4,0 ± 0,2	nd

nd: não determinado

< limite de detecção

Ao avaliar as concentrações dos elementos determinados, observou-se uma variação na concentração entre as amostras tanto de cogumelos quanto de solos para alguns elementos. Observou-se, ainda, que as concentrações para a maioria dos elementos foram mais elevadas no solo que nas amostras de cogumelos. Com exceção do Sc e K, que apresentaram, em aproximadamente 50% das amostras, concentrações mais elevadas nos cogumelos do que em seus respectivos solos. Vale ainda destacar que, todas as amostras do subgrupo V, que foram coletadas próximas ao Santuário Mariano Schoenstatt do Planalto de Poços de Caldas apresentaram concentrações de K maiores nos cogumelos do que nos solos.

Gast et al (1988) determinaram alguns elementos traços em amostras de cogumelos selvagens e observaram que estes são afetados diretamente pelo teor de sua matéria orgânica e também pelo ecossistema do solo.

Latiff et al (1996) relataram que os elementos Fe, Mn, Na e Zn estão presentes em altas concentrações em cogumelos, com níveis acima de 10 mg.kg^{-1} , o que foi observado também neste trabalho.

Na literatura, Zn é um elemento bastante estudado em cogumelos. Neste trabalho, foram obtidos valores superiores à literatura entre $9,1$ e 298 mg.kg^{-1} , como apresentados por Sanmee et al (2002) que determinaram este elemento em amostras de cogumelos na região da Tailândia, obtendo valores entre $37,8$ e 253 mg.kg^{-1} .

O cogumelo é uma boa fonte de potássio. Sanmee et al (2002) obtiveram valores entre 12800 e 45200 mg.kg^{-1} ($1,28$ e $4,52 \%$) de potássio em diferentes espécies de cogumelos comestíveis selvagens coletados na Tailândia. Pode-se observar, analisando o presente trabalho, que as amostras de cogumelos

silvestres, são também acumuladoras deste elemento, apresentando valores entre 0,16 e 3,45 % de K.

O potássio aparece com abundância média de 1,50% na crosta terrestre (Rudnick & Gao, 2004), estando desta maneira de acordo com os valores apresentados para este elemento no presente trabalho entre 0,16 e 5,07 % nas amostras de solo.

Há poucos trabalhos na literatura que apresentam teores de urânio e tório em cogumelos. Randa & Kucera (2003) avaliaram cogumelos coletados em diferentes locais da República Tcheca e encontraram concentrações muito baixas de Th, entre 0,3 e 3 mg.kg⁻¹. Neste estudo, as concentrações variaram de 0,16 a 162 mg.kg⁻¹ para U e de 0,10 a 57,2 mg.kg⁻¹ para Th nas amostras de cogumelos.

Segundo Rudnick e Gao (2004), U apresenta concentrações entre 1,3 e 2,7 mg.kg⁻¹, e Th entre 5,6 e 10,5 mg.kg⁻¹, na crosta terrestre em ambiente natural. No presente estudo, encontrou-se concentrações entre 3,1 e 47 mg.kg⁻¹ para o U e entre 7,2 e 1026 mg.kg⁻¹ para o Th. Essas altas concentrações podem ser devidas às áreas de anomalias radioativas presentes no Planalto (Taddei et al., 2001).

Elsikhry (2000) determinou Mn e Fe em amostras de solo coletadas no noroeste de Sinai no Egito, onde obteve concentração entre 143 e 305 mg.kg⁻¹ para Mn e 4400 e 19600 mg.kg⁻¹ (0,44 e 1,96 %) para Fe. Neste trabalho, os teores de Mn e Fe também foram muito mais elevados do que os apresentados no estudo das amostras coletadas no Egito, que variaram de 379 a 3617 mg.kg⁻¹ para Mn e de 0,9 a 12,74% para o Fe.

Nas FIGs. 20 a 32 são apresentadas, em forma de histogramas, as concentrações dos elementos determinados nas amostras de solos e cogumelos.

FIGURA 20 – Concentração de As nos cogumelos e solos

FIGURA 21 – Concentração de Co nos cogumelos e solos

FIGURA 22 – Concentração de Cr nos cogumelos e solos

FIGURA 23 – Concentração de Cs nos cogumelos e solos

FIGURA 24 – Concentração de Fe nos cogumelos e solos

FIGURA 25 – Concentração de K nos cogumelos e solos

FIGURA 26 – Concentração de La nos cogumelos e solos

FIGURA 27 – Concentração de Mn nos cogumelos e solos

FIGURA 28 – Concentração de Na nos cogumelos e solos

FIGURA 29 – Concentração de Na nos cogumelos e solos

FIGURA 30 – Concentração de Th nos cogumelos e solos

FIGURA 31 – Concentração de U nos cogumelos e solos

FIGURA 32 – Concentração de Zn nos cogumelos e solos

Avaliando os resultados obtidos das concentrações dos elementos por INAA, observou-se que teores mais elevados dos elementos determinados nos cogumelos e nos respectivos solos foram encontrados nas amostras coletadas em áreas rurais do Planalto de Poços de Caldas, onde ocorrem as maiores anomalias radioativas na região (ver FIG. 9), com poucas exceções de alguns elementos coletados em área urbana que apresentaram índices mais elevados (ver TAB. 3, 9 e 10).

As concentrações das amostras de cogumelos e solo, do mesmo local de amostragem, podem ser avaliadas através do cálculo do Fator de Transferência (FT). Os resultados para o FT e para a incerteza padrão propagada para cada uma das amostras realizadas por INAA são apresentados na TAB. 11.

TABELA 12 – Fator de Transferência dos elementos determinados nas amostras por INAA

Amostra	As	Co	Cr	Cs	Fe	K	La
1	0,56 ± 0,16	0,47 ± 0,01	0,58 ± 0,05	0,9 ± 0,1	0,70 ± 0,01	-	0,63 ± 0,01
2	0,09 ± 0,04	0,24 ± 0,01	0,36 ± 0,06	1,04 ± 0,08	0,090 ± 0,0001	-	0,13 ± 0,01
3	-	0,35 ± 0,04	0,10 ± 0,01	0,20 ± 0,01	0,023 ± 0,001	-	0,030 ± 0,001
4	-	0,67 ± 0,03	0,23 ± 0,03	-	0,190 ± 0,001	-	0,020 ± 0,001
5	-	-	-	-	-	0,55 ± 0,05	-
6	-	-	0,30 ± 0,05	-	0,71 ± 0,07	0,31 ± 0,06	0,12 ± 0,01
7	-	0,51 ± 0,02	1,8 ± 0,2	0,10 ± 0,02	0,48 ± 0,05	0,63 ± 0,04	0,0040 ± 0,0001
8	0,28 ± 0,02	0,06 ± 0,01	0,47 ± 0,01	-	0,54 ± 0,02	0,47 ± 0,07	0,23 ± 0,01
9	-	-	0,37 ± 0,02	1,7 ± 0,3	0,28 ± 0,01	1,07 ± 0,09	0,0010 ± 0,0001
10	0,11 ± 0,01	0,010 ± 0,001	0,19 ± 0,02	0,040 ± 0,001	0,015 ± 0,001	1,0 ± 0,1	0,050 ± 0,001
11	-	0,60 ± 0,01	-	-	0,32 ± 0,01	0,18 ± 0,01	0,040 ± 0,001
12	-	0,48 ± 0,04	0,63 ± 0,07	1,1 ± 0,2	1,36 ± 0,02	0,75 ± 0,05	0,30 ± 0,02
13	0,64 ± 0,04	0,06 ± 0,01	0,75 ± 0,03	0,27 ± 0,03	0,31 ± 0,01	-	1,7 ± 0,2
14	-	0,7 ± 0,1	-	0,40 ± 0,03	0,27 ± 0,01	1,2 ± 0,2	0,010 ± 0,001
15	-	1,6 ± 0,1	0,28 ± 0,05	0,72 ± 0,03	0,16 ± 0,01	1,5 ± 0,2	-
16	-	0,10 ± 0,01	0,93 ± 0,08	0,15 ± 0,02	0,010 ± 0,001	-	0,010 ± 0,001
17	0,003 ± 0,001	0,021 ± 0,002	0,050 ± 0,001	0,04 ± 0,01	0,0030 ± 0,0001	0,49 ± 0,05	0,020 ± 0,001
18	-	-	-	-	1,3 ± 0,1	-	0,51 ± 0,06
19	0,030 ± 0,002	0,010 ± 0,001	0,7 ± 0,1	0,17 ± 0,01	0,010 ± 0,001	1,38 ± 0,03	0,020 ± 0,001
20	-	0,44 ± 0,01	0,13 ± 0,03	-	0,18 ± 0,01	0,30 ± 0,01	0,020 ± 0,001
21	-	0,13 ± 0,02	0,14 ± 0,01	-	2,6 ± 0,6	0,6 ± 0,1	0,050 ± 0,001
22	-	0,47 ± 0,01	0,0010 ± 0,0001	0,9 ± 0,1	0,040 ± 0,001	-	-
23	-	0,89 ± 0,05	0,98 ± 0,09	1,2 ± 0,2	0,13 ± 0,01	0,13 ± 0,02	0,020 ± 0,001
24	-	1,10 ± 0,11	0,07 ± 0,01	0,54 ± 0,09	0,10 ± 0,01	0,74 ± 0,06	-

(-) FT não calculado devido concentrações encontradas abaixo do LD ou não foram determinadas

(cont.) TABELA 11 – Fator de Transferência dos elementos determinados nas amostras por INAA

Amostra	Mn	Na	Sc	Th	U	Zn
1	0,67 ± 0,02	-	0,67 ± 0,04	0,54 ± 0,05	-	1,02 ± 0,05
2	0,15 ± 0,01	0,54 ± 0,06	0,11 ± 0,03	0,17 ± 0,01	0,16 ± 0,01	-
3	0,020 ± 0,001	0,50 ± 0,07	0,30 ± 0,03	0,030 ± 0,001	0,32 ± 0,02	0,8 ± 0,1
4	0,10 ± 0,01	-	1,8 ± 0,2	0,018 ± 0,001	0,8 ± 0,2	0,050 ± 0,001
5	0,51 ± 0,07	0,010 ± 0,001	-	-	-	-
6	0,15 ± 0,01	0,19 ± 0,03	0,020 ± 0,001	0,072 ± 0,001	-	-
7	0,16 ± 0,01	0,17 ± 0,02	-	0,24 ± 0,02	-	-
8	0,26 ± 0,02	0,18 ± 0,02	0,48 ± 0,03	1,11 ± 0,02	0,160 ± 0,001	0,68 ± 0,01
9	0,010 ± 0,001	0,020 ± 0,001	-	0,0020 ± 0,0001	0,36 ± 0,03	0,11 ± 0,01
10	0,010 ± 0,001	0,010 ± 0,001	0,0090 ± 0,0001	0,015 ± 0,001	0,011 ± 0,001	1,15 ± 0,06
11	0,34 ± 0,01	1,07 ± 0,09	1,2 ± 0,1	0,020 ± 0,001	0,10 ± 0,01	0,22 ± 0,01
12	0,040 ± 0,001	0,18 ± 0,02	0,14 ± 0,01	0,31 ± 0,02	0,54 ± 0,06	1,0 ± 0,1
13	0,040 ± 0,001	0,18 ± 0,02	0,14 ± 0,01	0,31 ± 0,02	0,54 ± 0,06	1,0 ± 0,1
14	0,020 ± 0,001	0,0010 ± 0,0001	1,4 ± 0,1	0,014 ± 0,001	0,64 ± 0,05	-
15	0,010 ± 0,001	0,050 ± 0,001	1,10 ± 0,05	-	0,95 ± 0,02	0,14 ± 0,01
16	0,040 ± 0,002	0,26 ± 0,04	0,012 ± 0,001	0,0010 ± 0,0001	0,075 ± 0,001	0,60 ± 0,01
17	0,030 ± 0,001	0,12 ± 0,02	0,0030 ± 0,0001	0,011 ± 0,001	0,030 ± 0,001	0,08 ± 0,01
18	0,080 ± 0,001	0,060 ± 0,001	-	-	0,60 ± 0,05	-
19	0,010 ± 0,001	0,040 ± 0,001	0,0050 ± 0,0001	0,020 ± 0,001	0,010 ± 0,001	0,54 ± 0,05
20	0,050 ± 0,001	0,010 ± 0,001	1,3 ± 0,1	0,0040 ± 0,0001	0,26 ± 0,03	0,21 ± 0,02
21	0,040 ± 0,001	0,010 ± 0,001	1,0 ± 0,2	0,0020 ± 0,0001	1,5 ± 0,4	0,26 ± 0,01
22	0,020 ± 0,001	0,070 ± 0,001	1,0 ± 0,2	0,0030 ± 0,0001	1,1 ± 0,1	0,31 ± 0,05
23	0,040 ± 0,001	0,020 ± 0,001	-	0,050 ± 0,001	0,40 ± 0,05	0,45 ± 0,02
24	0,010 ± 0,001	0,10 ± 0,01	0,32 ±	0,0020 ± 0,0001	0,80 ± 0,05	0,9 ± 0,1

(-) FT não calculado devido concentrações encontradas abaixo do LD ou não foram determinadas

Pelos valores de FTs obtidos no presente trabalho, não podemos concluir que os cogumelos tiveram papel de indicadores de contaminação radioativa do meio ambiente, ou de bioacumulador, visto que os valores de transferência foram muito variados (TAB. 11). Estas consideráveis variações podem estar associadas às diferentes espécies de cogumelos analisadas.

Informações sobre transferência de elementos e radionuclídeos presentes no solo para cogumelos são praticamente inexistentes na literatura. Desta forma adotou-se comparar esses valores com os obtidos em plantas, embora os cogumelos sejam fungos e apresentem comportamento biológico diferente das plantas em geral (IAEA, 1994).

Baeza & Guillén (2006) estudaram o fator de transferência de urânio e tório do solo para o cogumelo em duas regiões distintas e características ecológicas semelhantes da Espanha. Foram obtidos valores de FT entre 0,043 e 0,49 para urânio, e entre 0,030 e 0,62 de FT para o tório. No presente trabalho, valores superiores a estes foram obtidos estando entre 0,01 e 1,5 para U e entre 0,002 e 1,11 para Th. Isso pode ser explicado de acordo com Turkekul et al. (2004) que as concentrações de elementos encontrados em cogumelos são consideravelmente mais elevadas do que as mesmas em cultivos de plantas, legumes e frutas em uma determinada região.

4.1.4- Comparação de Resultados Obtidos por INAA com Cogumelos Coletados em São Paulo

Um dos objetivos do presente trabalho foi analisar amostras de cogumelos silvestres de uma região que não apresenta anomalias radioativas e comparar os

resultados com os obtidos pelas amostras coletadas no Planalto de Poços de Caldas.

Os resultados obtidos para a análise desses cogumelos, em duplicata, são apresentados na TAB. 12.

Pode-se observar que os valores obtidos para as amostras de cogumelos coletadas em São Paulo são bem inferiores aos obtidos nas amostras de cogumelos do Planalto de Poços de Caldas (TAB. 9), principalmente em relação às concentrações de U e Th, que são de grande importância no contexto de um ambiente de radioatividade natural elevada.

TABELA 13 – Concentrações médias dos elementos determinados nas amostras de cogumelos de uma região de baixa radiação de fundo por INAA

Amostra	25	26	27	28	29
Elemento					
As (mg.kg ⁻¹)	< 0,03	< 0,03	< 0,03	< 0,03	< 0,03
Co (mg.kg ⁻¹)	69 ± 3	0,6 ± 0,1	0,11 ± 0,01	28,9 ± 0,2	0,61 ± 0,05
Cr (mg.kg ⁻¹)	9,1 ± 0,2	11 ± 1	0,020 ± 0,001	2,0 ± 0,8	10,8 ± 0,3
Cs (mg.kg ⁻¹)	0,08 ± 0,03	0,12 ± 0,01	0,04 ± 0,01	< 0,04	0,020 ± 0,002
Fe (%)	0,008 ± 0,001	0,20 ± 0,09	0,0020 ± 0,0004	3,23 ± 0,01	0,104 ± 0,007
K (%)	0,56 ± 0,06	1,03 ± 0,03	0,9 ± 0,1	0,30 ± 0,04	0,70 ± 0,02
La (mg.kg ⁻¹)	0,030 ± 0,004	2,7 ± 0,1	0,30 ± 0,01	< 0,05	1,90 ± 0,05
Mn (mg.kg ⁻¹)	12,9 ± 0,2	50 ± 1	12,2 ± 0,3	24,1 ± 0,2	30 ± 1
Na (mg.kg ⁻¹)	39 ± 7	56 ± 2	26 ± 5	33 ± 8	73 ± 2
Sc (mg.kg ⁻¹)	0,080 ± 0,004	0,4 ± 0,1	0,031 ± 0,001	6 ± 2	0,31 ± 0,01
Th (mg.kg ⁻¹)	< 0,11	< 0,11	< 0,11	< 0,11	< 0,11
U (mg.kg ⁻¹)	< 0,14	3,6 ± 0,2	< 0,14	< 0,14	3,0 ± 0,2
Zn (mg.kg ⁻¹)	11 ± 2	13,3 ± 0,3	11 ± 6	14 ± 1	13,1 ± 0,4

< limite de detecção

Os demais elementos determinados apresentaram-se dentro dos valores encontrados na literatura, destacando-se para os elementos essenciais (K, Fe e

Zn) encontrados nos cogumelos comestíveis ou em matéria orgânica em ambientes de baixa radioatividade natural.

4.2 Análise por Espectrometria Gama

A técnica de Espectrometria Gama foi utilizada para determinação dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de solo. Em princípio, pretendia-se aplicar esta técnica também para as análises de cogumelos. No entanto, as primeiras análises mostraram que a técnica não tinha sensibilidade adequada para a determinação destes radionuclídeos nesta matriz, pois os valores encontrados estavam todos abaixo do limite de detecção. Além disso, em alguns casos a quantidade de amostra de cogumelo coletada foi muito pequena, não permitindo assim realizar a análise.

4.2.1- Validação da Análise de Espectrometria Gama

A análise por Espectrometria Gama foi validada com relação à confiabilidade, rastreabilidade e comparabilidade através de análise do Material de Referência IAEA- Soil 327 da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 2001).

Os resultados obtidos para a determinação das atividades dos radionuclídeos no Material de Referência IAEA-Soil-327 para a Análise por Espectrometria Gama são apresentados na TAB. 14.

TABELA 14– Atividades dos radionuclídeos determinados no Material de Referência IAEA-Soil-327 por Espectrometria Gama

Radionuclídeo	Atividade ± Incerteza (Bq.kg ⁻¹)	Valor Certificado (Bq.kg ⁻¹)	Erro Relativo (%)	z-score
²¹⁰ Pb	66 ± 10	58,8 ± 4,9	12,2	0,70
²²⁶ Ra	34,0 ± 2,0	34,1 ± 1,4	0,3	-0,05
²²⁸ Ra	35,8 ± 3,5	38,7 ± 0,9	7,5	-0,82

Na FIG. 33 são apresentados os valores de z-score obtidos para o Material de Referência IAEA-Soil-327 para a Análise por Espectrometria Gama.

FIGURA 33 – Valores de z-score no Material de Referência IAEA-327-Soil por Espectrometria Gama

Os resultados obtidos mostram que o método aplicado para a determinação dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb apresentam boa exatidão, e também que os valores de erro relativos foram inferiores a 13% para radionuclídeos, e valores de |z| < 2.

4.2.2- Resultados Obtidos por Espectrometria Gama para os Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas Amostras de Solo

Os resultados obtidos nas determinações dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de solos por Espectrometria Gama, são apresentados na TAB. 15, sendo apresentado o valor de uma determinação e a incerteza padrão propagada para cada uma das amostras. O valor de LD para a técnica aplicada é de 30 Bq.kg^{-1} para os três radionuclídeos.

Para a determinação desses radionuclídeos por Espectrometria Gama, foi necessário esperar o equilíbrio radioativo entre o ^{226}Ra e seus radionuclídeos de decaimento (“filhos”) ^{214}Pb e ^{214}Bi (TAB. 1), visto que o ^{226}Ra mesmo sendo emissor gama não pode ser medido diretamente, devido à interferência do ^{235}U , com emissão de energia gama próxima.

O radionuclídeo ^{226}Ra emite uma única energia mensurável em 186 keV com intensidade de 4%. Esta energia, entretanto, sofre a interferência do pico de 185,7 keV do ^{235}U , de modo que, com esta pequena diferença entre as energias de apenas 0,5 keV, estes dois picos não são discriminados em detectores de HPGe.

A energia de 609 keV do ^{214}Bi , produto de decaimento do ^{226}Ra na série natural do ^{238}U , é muito seletiva, visto que não existe pico nas suas proximidades pertencente à série dos radionuclídeos naturais que possa interferir. Esta análise pode ser realizada desde que o equilíbrio radioativo entre o ^{226}Ra e seus produtos de decaimento não tenha sido afetado pela emanção do ^{222}Rn após a selagem da amostra.

TABELA 15 – Atividades dos radionuclídeos determinados nas amostras de solo por Espectrometria Gama

Amostra	$^{210}\text{Pb} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg⁻¹)	$^{226}\text{Ra} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg⁻¹)	$^{228}\text{Ra} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg⁻¹)
1	52 ± 2	77 ± 8	29 ± 6
2	56 ± 3	123 ± 16	153 ± 17
3	141 ± 9	68 ± 5	50 ± 6
4	237 ± 18	152 ± 12	195 ± 14
5	227 ± 13	213 ± 14	181 ± 5
6	174 ± 13	155 ± 11	138 ± 7
7	163 ± 8	146 ± 10	176 ± 7
8	209 ± 10	153 ± 10	194 ± 7
9	234 ± 12	173 ± 11	221 ± 8
10	183 ± 14	187 ± 13	114 ± 5
11	392 ± 15	129 ± 31	78 ± 5
12	304 ± 9	270 ± 46	195 ± 41
13	257 ± 17	225 ± 15	255 ± 9
14	228 ± 14	184 ± 12	233 ± 8
15	254 ± 11	142 ± 10	225 ± 6
16	141 ± 9	68 ± 5	50 ± 6
17	172 ± 23	185 ± 18	247 ± 18
18	227 ± 13	113 ± 7	163 ± 5
19	215 ± 12	237 ± 15	242 ± 9
20	185 ± 11	207 ± 14	176 ± 7
21	103 ± 6	97 ± 7	129 ± 5
22	201 ± 9	93 ± 7	157 ± 7
23	276 ± 12	136 ± 9	188 ± 9
24	141 ± 9	68 ± 5	50 ± 6

Outra maneira de determinar o radionuclídeo ^{226}Ra por Espectrometria Gama é através do fotopico de 352 keV do ^{214}Pb . Este radionuclídeo também apresenta outros fotopicos que não foram considerados nesta análise, de

1120 keV por ter baixa intensidade e em 1764 keV, de energia muito elevada e, como consequência, pode haver a queda de eficiência do detector.

A determinação de ^{228}Ra nesta análise é obtida pela medição do ^{228}Ac na energia de 911 keV, produto de decaimento do ^{228}Ra na série natural do ^{232}Th (TAB. 2).

Para a determinação do ^{210}Pb a radiação de fundo é o principal fator limitante para a aplicação desta análise. Devido à baixa energia dos raios gama emitidos pelo ^{210}Pb (46,5 keV) e à sua pequena abundância relativa (4%) há uma dificuldade na análise dessas medidas com exatidão, por isso foi feita uma correção para compensar o efeito de absorção, como citado anteriormente.

Nos solos, ^{210}Pb e Ra se concentram nas camadas superficiais. Embora a maior parte do chumbo da crosta terrestre resida em rochas e sedimentos, o seu transporte no meio ambiente se faz principalmente através da atmosfera (“fallout”), sendo seu transporte em solução praticamente desprezível. Já o Ra é essencialmente transportado em solução, dispersando-se no meio por corpos d’água (Vasconcelos, 1987).

Avaliando as atividades obtidas nos solos analisados observou-se que na maioria dos pontos de amostragem as atividades do ^{210}Pb foram mais elevadas comparadas as atividades dos isótopos de Ra. Isso pode ser explicado pelo fato do ^{210}Pb ser depositado por precipitação atmosférica.

Cardoso et al (2009) determinaram a partição geoquímica dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{226}Ra e ^{210}Pb em áreas circunvizinhas à Unidade de Mineração e Atividade de Urânio, no município de Caetité, Bahia, encontrando valores máximos de 74 e 196 Bq kg⁻¹ para ^{226}Ra e ^{210}Pb , respectivamente. No presente trabalho, foram observados valores superiores aos citados para ambos

os radionuclídeos, estando entre 68 e 270 Bq.kg⁻¹ para ²²⁶Ra e entre 52 e 292 Bq.kg⁻¹ para o ²¹⁰Pb.

4.3 Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total

Este método de separação radioquímica, seguido de contagem dos emissores Alfa e Beta Total, foi aplicado para análise das amostras de cogumelos na determinação dos radionuclídeos ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra e ²²⁸Ra. A contagem foi realizada em um contador proporcional de fluxo gasoso em filtros de Millipore. Além desta técnica ser muito sensível é também um método alternativo para avaliação das medidas desses radionuclídeos. Apresenta como característica principal uma baixa radiação de fundo, um limite de detecção menor e também não é necessária uma grande quantidade de amostra como na Espectrometria Gama.

4.3.1- Validação da Análise de Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total

A análise por separação radioquímica e contagem dos emissores Alfa e Beta Total foi validada através de análise do Material de Referência IAEA-Soil-327 da Agência Internacional de Energia Atômica.

Os resultados obtidos para a determinação da atividade dos radionuclídeos ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra e ²²⁸Ra no Material de Referência IAEA-Soil-327 por separação radioquímica e contagem dos emissores Alfa e Beta Total são apresentados na TAB. 16.

TABELA 16– Atividades dos radionuclídeos determinados no Material de Referência IAEA-Soil-327 por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total

Radionuclídeo	Atividade ± Incerteza (Bq.kg ⁻¹)	Valor Certificado (Bq.kg ⁻¹)	Erro Relativo (%)	z- score
²¹⁰ Pb	49,0 ± 7,0	58,8 ± 4,9	16,7	-1,32
²²⁶ Ra	36,5 ± 1,3	34,1 ± 1,4	7,0	1,63
²²⁸ Ra	35,0 ± 4,0	38,7 ± 0,9	9,6	-0,92

Na FIG. 34 são apresentados os valores de z-score obtidos para os radionuclídeos ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra e ²²⁸Ra no Material de Referência IAEA-327-Soil por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total

FIGURA 34 – Valores de z-score no Material de Referência IAEA-327-Soil por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total

Os resultados obtidos mostram que o método aplicado para análise dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb por separação radioquímica e contagem dos emissores Alfa e Beta Total apresenta-se confiável e com exatidão, erro relativo inferior a 17% e valores de |z| < 2.

4.3.2- Resultados da Determinação dos Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb por Separação Radioquímica com Contagem dos Emissores Alfa e Beta Total nas Amostras de Cogumelos

Os resultados obtidos nas determinações dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas amostras de cogumelos por separação radioquímica e contagem Alfa e Beta Total em contador proporcional de fluxo gasoso, são apresentados na TAB. 17, sendo apresentados os valores de uma determinação e incerteza padrão propagada para cada uma das amostras. A recuperação química para as amostras de Ra esteve entre 73 e 99% e para as amostras de Pb entre 61 e 84%.

O Limite de Detecção (LD) para a análise de separação radioquímica e contagem Alfa e Beta Total em contador proporcional de fluxo gasoso é fornecido pelo equipamento e estabelecido como sendo de 10 Bq.kg^{-1} para ^{210}Pb e de 4 Bq.kg^{-1} para ^{226}Ra e ^{228}Ra .

A determinação dos radionuclídeos ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra (FIG. 15 e 16) na análise de Alfa e Beta Total em contador proporcional de fluxo gasoso foi realizada de maneira indireta. O ^{210}Pb é recuperado como PbCrO_4 e sua medição realizada através do ^{210}Bi após o equilíbrio radioativo. Este método apresenta alta sensibilidade devido à alta eficiência de contagem e à baixa irradiação de fundo.

A técnica de precipitação aplicada para a determinação do Ra elimina cátions interferentes dos elementos químicos estáveis, como Al, Fe, Ca e Sr. No contador proporcional de fluxo gasoso, a determinação do ^{226}Ra foi realizada pela atividade alfa total da medida do precipitado contendo rádio, Ba(Ra)SO_4 , sendo identificado pela taxa de seu produto de decaimento do ^{222}Rn de meia vida curta.

A determinação de ^{228}Ra no contador proporcional de fluxo gasoso foi realizada pela contagem beta total do precipitado de Ba(Ra)SO_4 , através de seu radionuclídeo seguinte, ^{228}Ac , na cadeia de decaimento da série natural do ^{232}Th .

O tempo de espera para a contagem é de extrema importância para se considerar os equilíbrios entre os radionuclídeos requeridos e seus produtos de decaimento.

TABELA 17– Atividades do radionuclídeos determinados nos cogumelos por Separação Radioquímica e Contagem Alfa e Beta Total

Amostra	²¹⁰ Pb ± Incerteza (Bq.kg ⁻¹)	²²⁶ Ra ± Incerteza (Bq.kg ⁻¹)	²²⁸ Ra ± Incerteza (Bq.kg ⁻¹)
1	20 ± 2	21 ± 2	33 ± 4
2	41 ± 5	43 ± 9	43 ± 6
3	11 ± 1	12 ± 2	12 ± 2
4	19 ± 2	24 ± 3	27 ± 6
5	22 ± 2	27 ± 4	27 ± 8
6	10 ± 1	30 ± 1	34 ± 8
7	34 ± 3	33 ± 6	30 ± 4
8	65 ± 6	27 ± 1	19 ± 4
9	64 ± 7	102 ± 9	120 ± 10
10	13 ± 1	8,0 ± 0,3	7,0 ± 0,2
11	11 ± 1	92 ± 6	112 ± 10
12	160 ± 10	170 ± 20	120 ± 10
13	40 ± 4	40 ± 10	48 ± 8
14	< 10	< 4	< 4
15	< 10	4,3 ± 0,2	< 4
16	230 ± 3	9 ± 1	11 ± 3
17	40 ± 4	35 ± 6	34 ± 4
18	36 ± 3	8 ± 1	40 ± 8
19	< 10	4,2 ± 0,6	< 4
20	25 ± 2	16 ± 1	13 ± 3
21	12 ± 1	6,0 ± 0,4	7,0 ± 0,2
22	13 ± 1	< 4	< 4
23	16 ± 2	8,0 ± 0,2	7 ± 2
24	< 10	< 4	< 4

Avaliando os resultados obtidos foi possível observar uma grande variação das atividades entre os mesmos radionuclídeos nos diferentes locais de amostragem, predominando na maioria das amostras uma maior atividade dos isótopos de Ra em relação a do ^{210}Pb . Isso pode ser explicado pelo transporte do ^{210}Pb no meio ambiente, que se faz principalmente através da atmosfera (“fallout”), sendo seu transporte em solução praticamente desprezível, enquanto que o Ra é essencialmente transportado em solução, dispersando-se no meio por corpos d’água.

Desta maneira, pode ser explicada a transferência de grande parte destes radionuclídeos presentes no solo para os materiais orgânicos. Esse transporte é de certa forma, facilitado pelas características meteorológicas da região do planalto de Poços de Caldas, que apresenta altas precipitações pluviométricas anuais, superiores a 1500 mm.

Kirchner e Daillant (1998) avaliaram atividades de ^{210}Pb comparadas com as do ^{226}Ra em fungos coletados em três regiões da França, e observaram atividades de ^{210}Pb mais elevadas do que as do ^{226}Ra . Isto pode ser entendido que o ^{210}Pb presente nas amostras pode não ser apenas fruto de transferência do solo para o cogumelo, mas também proveniente da deposição direta sobre o cogumelo da atmosfera. Comportamento semelhante foi também observado em alguns pontos de amostragem no presente trabalho, como em quase todas as amostras do grupo VI, coletadas na zona urbana do Planalto de Poços de Caldas.

No trabalho de Kirchner e Daillant (1998) foram obtidas atividades entre menor que LD de 1,76 e 36,5 Bq.kg⁻¹ de ^{210}Pb , média de 12 Bq.kg⁻¹ de ^{226}Ra . Valores inferiores aos obtidos no presente trabalho, que estiveram entre menor

que LD de 10 e 230 Bq.kg⁻¹ para ²¹⁰Pb e entre menor que LD de 4 e 170 Bq.kg⁻¹ para ²²⁶Ra.

Avaliando ainda as atividades dos radionuclídeos determinados, observou-se uma variação significativa entre os pontos de amostragem, do mesmo grupo, para os cogumelos e também para os solos. Observou-se, ainda, que as atividades, quase que na totalidade, para esses radionuclídeos foram mais elevadas no solo que nas amostras de cogumelos. Nas FIGs. 35, 36 e 37 são apresentadas as atividades obtidas nas amostras de solos e cogumelos para os radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb, respectivamente.

FIGURA 35 – Atividades de ²²⁶Ra nos cogumelos e solos

FIGURA 36 – Atividades de ^{228}Ra nos cogumelos e solos

FIGURA 37 – Atividades de ^{210}Pb nos cogumelos e solos

4.3.3- Fator de Transferência Solo-Cogumelo para os Radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb

As diferenças entre as atividades encontradas nas amostras de cogumelos e de solo, do mesmo local de amostragem, podem ser avaliadas através do cálculo do Fator de Transferência (FT). Os FTs solo-cogumelo para os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb são apresentados na TAB. 18.

Observando os FTs obtidos, não se pode concluir que cogumelo tem o papel de indicador ou de bioindicador de contaminação radioativa do meio ambiente, pois foi observada uma transferência muito variável dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb presentes no solo para as amostras de cogumelos.

Adotou-se comparar os valores de FTs com os obtidos para plantas, mas existe a desvantagem de que cogumelos são fungos e apresentam comportamento biológico diferente das plantas em geral.

Vasconcelos (1984) realizou um estudo avaliando o fator de transferência de ^{210}Pb e ^{226}Ra entre o solo e amostras de batata, cenoura, feijão e milho, coletados no planalto de Poços de Caldas. Foram obtidos valores entre 0,002 e 0,15 para o ^{226}Ra , considerando uma média de 0,01 para todos os produtos agropecuários analisados. No presente trabalho, valores superiores aos apresentados foram obtidos, estando entre 0,02 e 0,71 para o ^{226}Ra . Já para ^{210}Pb , Vasconcellos considerou o valor médio de 0,01, variando entre 0,002 e 0,092. No presente trabalho, o ^{210}Pb trabalho apresentou também intervalos mais elevados, estando entre 0,06 e 1,63.

TABELA 18 – Fator de Transferência Solo-Cogumelos para os Radionuclídeos

Amostra	²²⁶ Ra, ²²⁸ Ra e ²¹⁰ Pb		
	²¹⁰ Pb	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra
1	0,38 ± 0,04	0,27 ± 0,04	1,1 ± 0,3
2	0,73 ± 0,09	0,35 ± 0,09	0,28 ± 0,05
3	0,080 ± 0,001	0,18 ± 0,03	0,24 ± 0,05
4	0,08 ± 0,01	0,16 ± 0,02	0,14 ± 0,03
5	0,10 ± 0,01	0,13 ± 0,02	0,15 ± 0,04
6	0,060 ± 0,001	0,19 ± 0,02	0,25 ± 0,06
7	0,21 ± 0,02	0,23 ± 0,04	0,17 ± 0,02
8	0,31 ± 0,03	0,18 ± 0,01	0,10 ± 0,02
9	0,27 ± 0,03	0,59 ± 0,06	0,54 ± 0,05
10	0,070 ± 0,001	0,040 ± 0,001	0,06 ± 0,02
11	0,030 ± 0,001	0,71 ± 0,19	1,4 ± 0,2
12	0,53 ± 0,04	0,6 ± 0,1	0,6 ± 0,1
13	0,16 ± 0,02	0,18 ± 0,05	0,19 ± 0,03
14	-	-	-
15	-	0,030 ± 0,002	-
16	1,6 ± 0,1	0,13 ± 0,02	0,22 ± 0,07
17	0,23 ± 0,04	0,19 ± 0,04	0,14 ± 0,02
18	0,16 ± 0,02	0,070 ± 0,001	0,25 ± 0,05
19	-	0,020 ± 0,002	-
20	0,14 ± 0,01	0,080 ± 0,001	0,07 ± 0,01
21	0,12 ± 0,01	0,060 ± 0,001	0,050 ± 0,002
22	0,060 ± 0,001	-	-
23	0,060 ± 0,001	0,060 ± 0,001	0,04 ± 0,01
24	-	-	-

(-) FT não calculado devido atividades encontradas abaixo do LD

4.3.4- Comparação dos Resultados de ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra com os Obtidos em uma Região de Baixa Atividade Natural

Foram comparados os valores de atividades dos radionuclídeos obtidos nas determinações de ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra do presente estudo com cinco amostras de cogumelos silvestres coletadas na região de São Paulo, sendo esta área considerada de baixa atividade natural. Os valores de uma determinação dos radionuclídeos ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra e incerteza de medição para cada uma das cinco amostras são apresentados na TAB. 19.

Mais uma vez é bem visível a diferença entre os valores obtidos para as amostras da região de baixo BG e o Planalto de Poços de Caldas, podendo-se destacar que nesta região as amostras apresentaram atividades baixíssimas, menores que o limite de detecção, em quase todas as amostras. Estes radionuclídeos são de grande importância no contexto em um ambiente de radioatividade natural elevada, visto que são nuclídeos da cadeia de decaimento das séries naturais do ^{238}U e do ^{232}Th .

TABELA 19 – Atividades dos radionuclídeos de ^{210}Pb , ^{226}Ra e ^{228}Ra determinados nas amostras de cogumelos de São Paulo

Amostra	$^{210}\text{Pb} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg^{-1})	$^{226}\text{Ra} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg^{-1})	$^{228}\text{Ra} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg^{-1})
25	< 10	< 4	< 4
26	23 ± 3	< 4	< 4
27	14 ± 1	< 4	< 4
28	< 10	< 4	< 4
29	< 10	< 4	< 4

< limite de detecção

4.4 Análise por Espectrometria Alfa

Vários trabalhos avaliando a incorporação dos isótopos de tório em produtos agrícolas já foram realizados na região do Planalto de Poços de Caldas. Esta técnica foi também aplicada para a determinação dos isótopos de Th, a saber, ^{228}Th , ^{230}Th e ^{232}Th , nas amostras de cogumelos.

Esta técnica apresenta como vantagem a elevada sensibilidade devido à baixa atividade de fundo e à alta seletividade para as partículas alfa.

4.4.1- Validação da Análise por Espectrometria Alfa

A análise por Espectrometria Alfa foi validada com relação à confiabilidade, rastreabilidade e comparabilidade através de análise do Material de Referência IAEA-Soil-327 da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 2001).

Os resultados obtidos para a determinação da atividade dos isótopos de Th no Material de Referência IAEA-Soil-327 para a Análise por Espectrometria Alfa são apresentados na TAB. 20.

TABELA 20 – Atividades dos isótopos de Tório no Material de Referência IAEA-Soil-327 por Espectrometria Alfa

Radionuclídeo	Atividade $\pm$ Incerteza (Bq.kg ⁻¹)	Valor Certificado (Bq.kg ⁻¹)	Erro Relativo (%)	z-score
^{228}Th	37,0 $\pm$ 1,7	38,2 $\pm$ 1,0	3,1	-0,68
^{230}Th	33,3 $\pm$ 1,5	34,1 $\pm$ 1,7	2,3	-0,46
^{232}Th	37,6 $\pm$ 1,7	38,7 $\pm$ 1,5	2,8	-0,59

Na FIG. 38 são apresentados os valores de z-score obtidos para o Material de Referência IAEA-Soil-327 por Espectrometria Alfa.

Os resultados obtidos mostram que o método aplicado para a determinação dos isótopos de Th mostrou boa exatidão, apresentando valores de erro relativos menores que 3,17% e valores de $|z| < 2$.

FIGURA 38 – Valores de z-score no Material de Referência IAEA-327-Soil por Espectrometria Alfa

4.4.2- Resultados da determinação dos Isótopos de Tório nas Amostras de Cogumelos por Espectrometria Alfa

Os resultados obtidos nas determinações dos isótopos de Th nas amostras de cogumelo por Espectrometria Alfa são apresentados na TAB. 21, sendo apresentados os valores de uma determinação e incerteza de medição para cada uma das amostras. Os valores de LD para a técnica aplicada na determinação desses isótopos foram de $0,90 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{228}Th , $0,40 \text{ Bq.kg}^{-1}$ para o ^{230}Th e de

0,50 Bq.kg⁻¹ para o ²³²Th. A recuperação química do traçador ²²⁹Th nas amostras variou entre 58 e 100%.

Tório é um elemento radioativo de ocorrência natural, amplamente distribuído na crosta da terra. As regiões com elevada radioatividade natural no planalto apresentam predominância deste elemento em corpos mineralizados (Taddei et al., 2001).

Analisando os resultados obtidos, observa-se que quase todas as amostras apresentaram atividades de ²²⁸Th mais elevadas que as de ²³²Th. Este desequilíbrio pode ser explicado pois o ²²⁸Th origina-se do decaimento do ²²⁸Ra (ver TAB. 2), e este é resultante da absorção preferencial e mais rápida pelos cogumelos que o ²³²Th.

Baeza et al. (2006) determinaram Cs, K, Pu, Ca, Th, U e Ra, em diferentes partes de cogumelos da espécie *Pleurotus eryngii*, e avaliaram que o desequilíbrio radioativo entre os isótopos ²²⁸Th e ²³²Th está diretamente associada com o ²²⁸Th, originário do decaimento do ²²⁸Ra.

Taddei et al. (2001) determinaram isótopos de urânio e tório em vegetais e fezes da população do planalto de Poços de Caldas, usando coprecipitação e resinas de separação de troca iônica, e puderam comprovar a sensibilidade do método e a aplicação de vegetais como monitores de contaminação ambiental da população .

Linsalata et al. (1986) avaliaram a ingestão de tório e elementos de terras raras na população de Poços de Caldas, através de análises de fezes em amostras da população, e observaram que a ingestão diária destes elementos está de acordo com valores recomendados

TABELA 21– Atividades dos isótopos de Tório determinados por Espectrometria Alfa em cogumelos

Amostra	$^{228}\text{Th} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{230}\text{Th} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{232}\text{Th} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg ⁻¹)
1	42 ± 2	12 ± 1	40 ± 2
2	63 ± 3	33 ± 2	51 ± 2
3	4,1 ± 0,4	6,9 ± 0,4	3,3 ± 0,4
4	24 ± 5	15 ± 2	22 ± 3
5	28 ± 1	17 ± 1	23 ± 4
6	84 ± 11	17 ± 2	32 ± 5
7	43 ± 2	21 ± 1	36 ± 2
8	28 ± 2	23 ± 1	26 ± 1
9	127 ± 4	52 ± 13	113 ± 4
10	9 ± 1	4,4 ± 0,4	5,3 ± 0,6
11	124 ± 13	81 ± 3	97 ± 7
12	160 ± 8	87 ± 5	142 ± 7
13	52 ± 3	25 ± 1	49 ± 2
14	1,7 ± 0,1	< 0,40	0,6 ± 0,1
15	1,51 ± 0,05	2,2 ± 0,3	2,2 ± 0,3
16	13 ± 1	7,4 ± 0,4	11 ± 1
17	28 ± 1	16 ± 1	28 ± 1
18	3,1 ± 0,1	5,6 ± 0,6	2,6 ± 0,4
19	4,8 ± 0,2	5,3 ± 0,8	1,2 ± 0,4
20	11 ± 1	2,6 ± 0,5	9 ± 1
21	2,7 ± 0,1	2,4 ± 0,4	2,0 ± 0,3
22	3,9 ± 0,4	< 0,40	1,3 ± 0,2
23	11 ± 1	5,0 ± 0,3	10 ± 1
24	1,11 ± 0,03	0,6 ± 0,1	0,8 ± 0,1

Eisenbud & Franca (1984) estudaram o transporte de urânio, tório, elementos de terras raras, ^{226}Ra e ^{228}Ra do solo para animais de fazendas próximas ao Morro do Ferro no Planalto de Poços de Caldas. Observou-se

também o desequilíbrio radioativo entre ^{232}Th e o ^{228}Th , resultado do decaimento do ^{228}Ra para ^{228}Th . No presente estudo esse desequilíbrio também foi observado na maioria das amostras.

4.4.3- Determinação da Atividade dos Isótopos de Tório em Cogumelos Coletados em uma Região de Baixa Radioatividade Natural

As atividades dos isótopos de tório foram determinadas em cinco amostras de cogumelos coletadas na região de São Paulo, sendo esta considerada área de baixa atividade natural. Os valores de uma determinação dos radionuclídeos ^{228}Th , ^{230}Th , ^{232}Th e respectivas incertezas padrão propagada para cada uma das cinco amostras são apresentados na TAB. 22.

TABELA 22 – Atividades dos isótopos de tório determinados nas amostras de cogumelos coletados na região de São Paulo

Amostra	$^{228}\text{Th} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{230}\text{Th} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg ⁻¹)	$^{232}\text{Th} \pm \text{Incerteza}$ (Bq.kg ⁻¹)
25	< 0,90	1,05	< 0,50
26	< 0,90	< 0,40	< 0,50
27	< 0,90	1,44	< 0,50
28	< 0,90	< 0,40	< 0,50
29	< 0,90	< 0,40	< 0,50

Pode-se observar que as atividades dos isótopos de Th foram praticamente todas abaixo dos valores de LD.

Avaliando os resultados de atividades para os isótopos de tório observa-se uma grande diferença entre o Planalto de Poços de Caldas e a região de baixa radiação de fundo.

CAPÍTULO 5

CONCLUSÃO

Com a realização do presente estudo no Planalto de Poços de Caldas, região de elevada radioatividade natural, foi possível avaliar o comportamento de cogumelos como indicadores de contaminação radioativa no meio ambiente.

Os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb foram determinados nas amostras de cogumelos e dos respectivos solos, e o U e Th foram determinados por INAA, o ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb por Espectrometria Gama nas amostras de solo e por separação radioquímica e contagem em contador proporcional de fluxo gasoso nas amostras de cogumelo.

As concentrações de elementos estáveis como As, Co, Cr, Cs, Fe, K, La, Mn, Na, Sc e Zn foram também determinadas nas amostras de cogumelos e solos por INAA.

Foram também determinadas as atividades dos isótopos de tório nas amostras de cogumelos por Espectrometria Alfa, onde foi possível verificar o de desequilíbrio entre os radionuclídeos ^{232}Th e ^{228}Th . A avaliação dos isótopos de tório é de grande importância no contexto em um ambiente de radioatividade natural elevada, visto que são radionuclídeos da cadeia de decaimento das séries naturais do ^{238}U e do ^{232}Th , presentes em concentrações elevadas em regiões de radioatividade natural como a região do presente estudo.

As metodologias aplicadas foram avaliadas quanto à veracidade e precisão através da análise de quatro Materiais de Referência, que apresentaram valores concordantes com os certificados.

Os fatores de transferências (FTs) dos elementos estáveis e dos radionuclídeos obtidos no presente estudo, apresentaram grande variações, tornando difícil avaliar o comportamento do cogumelo como bioacumulador de contaminação radioativa através desses fatores.

Os resultados obtidos nas determinações dos elementos e dos radionuclídeos nas amostras de cogumelo do presente estudo foram comparados com cinco amostras de cogumelos silvestres coletadas na região de São Paulo, sendo esta considerada área de baixa radiação de fundo, ou sem anomalias radioativas como as apresentadas no Planalto de Poços de Caldas. Foram encontradas grandes diferenças entre as duas regiões avaliadas. Na maioria das análises das amostras coletadas na região de baixa radiação de fundo, os resultados obtidos foram abaixo dos valores de limite de detecção, podendo assim verificar a sensibilidade do cogumelo como indicador de contaminação radioativa do meio ambiente e seu papel de bioacumulador.

Com os estudos do presente trabalho foi possível ressaltar o importante papel do cogumelo como indicador para monitoramento ambiental. Assim como, a importância da determinação dos radionuclídeos em um ambiente que apresenta radioatividade natural elevada, visto que fazem parte da cadeia das séries radioativas naturais.

CAPÍTULO 6

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

BAEZA, A.; GUILLEN, J. Influence of the soil bioavailability of radionuclides on the transfer of uranium and thorium to mushrooms. ***Applied Radiation and Isotopes***, v. 64, p. 1020-1026, 2006.

BAEZA, A.; GUILLÉN, F. J.; SALAS, A.; MANJON, J. L. Distribution of radionuclides in different parts of a mushroom: Influence of the degree of maturity. ***Science of the Total Environment***. v. 359, p. 255-266, 2006.

CÂMARA, G.; MEDEIROS, J. S.; BARBOSA, C. C. F.; CAMARGO, E. C. G. ***Geoprocessamento para Projetos Ambientais***. Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais. 2 ed. São José dos Campos – SP, 1998. cap. 6, Metodologias para aplicações ambientais. P. 6.2-6.25.

CARDOSO, G.V.; SOBRINHO, N.M.A.; WASSERMAN, A.V.; MAZUR, N. Geoquímica de radionuclídeos naturais em solos de áreas circunvizinhas a uma unidade de mineração e atividade de urânio. ***Revista Brasileira de Ciência do Solo***. v. 33, p. 1909-1917, 2009.

CASTRO, L. P. ***Radionuclídeos Naturais e ^{137}Cs em Cogumelos Comestíveis em São Paulo-Brasil***. 2008. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

CIENFUEGOS, F. ***Estatística aplicada ao laboratório***. Rio de Janeiro: Interciência, 2005.

CURRIE L.A. Nomenclature in evaluation of analytical methods including detection and quantification capabilities (IUPAC Recommendations 1995) *Analitical Chimica Acta*, v.391, p:105-126, 1999.

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

DEMIRBAS, A. Heavy metal bioaccumulation by mushrooms from artificially fortified soils. ***Food Chemistry***, v. 74, p. 293-301, 2001.

DUFF, M. C.; RAMSEY, M. L. Accumulation of radiocesium by mushrooms in the environment: a literature review. **Journal of Environment Radioactivity**, v. 99, p. 912-932, 2008.

ELSIKHRY, E. M. Supplying power of some soils of Egypt for Mn and Fe. ICEHM2000, Cairo University, v. 09 (september), p. 33-46, 2000.

EISENBUD, M.; FRANCA, E. P. Studies of transport pathways of Th, U, REE's, ^{228}Ra , and ^{226}Ra from soil to farm animals. **U. S. Departament of Energy Office of Heath an Environmental Research**. New York University, NY (USA). Medical Center; Medical Center, Rio de Janeiro University (Brazil). Instituto de Biofísica, 1984.

FRISSEL, M. J.; DEB D. L.; FATHONY M.; LIN Y. M.; MOLLAH A. S.; NGO N. T.; OTHMAN I.; ROBISON W. L.; SKARLOU-ALEXIOU V.; TOPCUOGLU S.; TWINING J. R.; UCHIDA S.; WASSERMAN M. A. Generic Values for Soil to Plant Transfer Factors of Radiocesium. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 58, p. 113-128, 2002.

GARCIA, M. A.; ALONSO, J.; MELGAR, M. J. Lead in edible mushrooms levels bioaccumulation factors. **Journal of Hazardous Materials**. v. 167, p. 777-783, 2009.

GAST, C. H.; JENSEN, E.; BIERLING, J. HAANSTRAN, L. Heavy metals in mushrooms and their relationship with soil characterictics. **Chemosphere**, v. 17, p. 789-799, 1988.

GOOGLE MAPS-SATÉLITE: Planalto de Poços de Caldas, 2011. Disponível em: <<http://maps.google.com.br/maps?hl=pt-BR&tab=wl>> Acesso em: 14 mar. 2011.

GUILLÉN, J., BAEZA, A.; M.A.ONTALBA. MIGUEZ,M.P. ^{210}Pb and stable lead content in fungi: Its transfer from soil. **Science of the Total Environment**, v. 407, p. 4320-4326, 2009.

HEAL WITH FOOD.ORG: Condition specific nutrition guide on 50 common conditions and diseases. Mushrooms that absorb radioactive cesium-137 abd other radionuclides. Março 20, 2011. Disponível em: <<http://www.healwithfood.org/articles/mushrooms-radioactive-cesium-nuclear.php>>. Acesso em: 21 set. 2011.

INDÚSTRIAS NUCLEÁRES DO BRASIL – NUCLEBRÁS. **Poços de Caldas: mapa radiométrico do planalto de Poços de Caldas.** 1975.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA): Handbook of Parameters Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments. IAEA, Vienna. 1994. Disponível em: <http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/trs472_web.pdf> Acesso em: 30 nov. 2011.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA): **Quality aspects of research reactor operations for instrumental neutron activation analysis laboratory.** Viena: IAEA, 2001 (IAEA – TECDOC – 1218).

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). **Reference Sheet: reference material IAEA-327 radionuclides in soil.** Viena, 2001.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA): Extent of Environmental Contamination by Naturally Occurring Radioactive Material (NORM) and Technological Options for Mitigation. Viena: IAEA, 208 p. 2003. Disponível em: <http://www-pub.iaea.org/MTCD/publications/PDF/TRS419_web.pdf> Acesso em: 23 set. 2011.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). “Radiation, People and the Environment”. Viena: IAEA, 85p. 2004. Disponível em: <http://www.iaea.org/Publications/Booklets/RadPeopleEnv/pdf/radiation_low.pdf> Acesso em 29 set. 2011.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA): Fukushima nuclear accident update log. Junho 2, 2011. Disponível em: <<http://www.iaea.org/newscenter/news/tsunamiupdate01.html>> Acesso em: 26 set. 2011.

INSTITUTE OF NUCLEAR CHEMISTRY AND TECHNOLOGY (INCT) Certificate of analysis. **Mixed Polish Herbs INCT-MPH-2**, Warszawa, Polônia, October 31, 2002.

KADUKA, M. V.; SHUTOV, V. N.; BRUK, G. Y.; BALONOV, M. I.; BROWN, J. E., STRAND, P. Soil-dependent uptake of ¹³⁷Cs by mushrooms: experimental study in the Chernobyl accident areas. **Journal of Environmental Radioactivity**. v.89, p. 199-221, 2006.

KALAC, P. A review of edible mushroom radioactivity. **Food Chemistry**, v. 75(1), p. 29-35, 2001.

KALAC, P.; SVOBODA, L. A review of trace element concentrations in edible mushrooms. **Food Chemistry**, v. 69, p. 273-281, 2000.

KARADENIZ, O.; YAPRAK, G. Soil-to-mushroom transfer of ^{137}Cs , ^{40}K , alkali-alkaline earth element and heavy metal in forest sites of Izmir, Turkey. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 288, p. 261-270, 2011.

KIRCHNER, G.; DAILLANT, O. Accumulation of ^{210}Pb , ^{226}Ra and radioactive cesium by fungi. **Science of the Total Environment**, v. 222, p. 63-70, 1998.

KIRK, P.M.; CANNON, P.F.; MINTER, D.W.; STALPERS, J.A. **Ainsworth & Bisby's Dictionary of the Fungi**. 10 ed. Wallingford: 771 p, 2008.

LAPIDO-LOUREIRO, F.E.V. Terras-raras no Brasil: Depósitos, recursos identificados, reservas. Série Estudos e Documentos 21, CETEM/CNPq, 189 p, 1994.

LATIFF, L.A.; DARAN, A.B.M.; MAHAMED, A.B. Relative distribution of minerals in the pileus and stalk of some selected edible mushrooms. **Food Chemistry**, v. 56, p. 115-121, 1996.

LAURIA, D. C.; MARTINS, N. S. F.; ZENARO, R. Monitoração radiológica ambiental. **Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD**, Rio de Janeiro, v. 1, p. 166, 2007.

LIM, J. M.; LEE, J. H.; SUN, G. M.; MOON, J. H.; CHUNG, Y. S.; KIM, K. H. The geographical origin and chemical composition in phellinus mushrooms measured by instrumental neutron activation analysis. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 291, p. 451-455, 2012.

LINSALATA, P.; EISENBUD, M.; PENNA FRANCA, E. Ingestion Estimates of Th and the Light Rare Earth Elements Based on Measurements of Human Faeces. **Health Physics**, v. 50(1), p. 163-167, 1986.

MARTIUS, C.; TIESSEN, H.; VLEK, P.L.G. The management of organic matter in tropical soils: what are the priorities?. **Nutrient Cycling in Agroecosystems**, v. 61, p. 1-6, 2001.

MALINOWSKA, E.; SZEFER, P.; BOJANOWSKI, R. Radionuclides content in *Xerocomus badius* and other commercial mushrooms from several regions of Poland. **Food Chemistry**, v. 97, p. 19-24, 2006.

MARZANO, F.N.; BRACCHI, P.G.; PIZZETI, P. Radiactive and conventional pollutants accumulated by edible mushrooms (*Boletus sp*) are useful indicators of species origin. **Environmental Research**, v. 85(3), p. 260-264, 2001.

MELGAR, M. J.; ALONSO, J.; GARCIA, M. A. Mercury in edible mushrooms and underlying soil: bioconcentration factors and toxicological risk. **Science of the Total Environment**, v. 407, p. 1784-1797, 2009.

MIETELSKI, J. W.; DUBCHAK, S.; BLAZEJ, S.; ANIELSKA, T.; TURNAU, K. ^{137}Cs and ^{40}K in fruiting bodies of different fungal species collected in a single forest in southern Poland. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 101(9), p. 706-711, 2010.

MOTRENKO, H. P.; ROSSBACH, M. Preparation and characterization of a proficiency test material "Polish mushrooms" supported by the International Atomic Energy Agency (IAEA), Vienna - General Paper, **Accreditation Quality Assurance**, v. 12, p. 343-350, 2007.

MOURA, P. L. C. **Determinação de Elementos Essenciais e Tóxicos em Cogumelos Comestíveis por Análise por Ativação com Nêutrons**. 2008. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS & TECHNOLOGY (NIST): Report of Investigation. **Reference Material 8704 – Buffalo River Sediment**, Gaithersburg, United States of America, January 08, 2008.

OLIVEIRA, J. **Determinação de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas minerais da região de Águas da Prata**. 1993. Dissertação (Mestrado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

PONDEIRO, E. M. B. D. **Avaliação de modelos de impacto ambiental para deposição de resíduos sólidos contendo radionuclídeos naturais em instalações minero-industriais**, 2006. Tese (Doutorado) – Engenharia mecânica da Universidade Federal do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro.

PROJETO PLANALTO DE POÇOS DE CALDAS. Pesquisa câncer e radiação natural: Minas Gerais Brasil: 2004 a 2009 / Secretaria de Estado de Saúde de Minas Gerais. – Belo Horizonte: SESMG, 96 p., 2009.

RANDA. Z; KUCERA J. Trace elements in higher fungi (mushrooms) determined by activation analysis. ***Journal of Radionalytical and Nuclear Chemistry***, v. 259, p. 99-107, 2003.

RUDNICK, R.; GAO, S. Composition of the continental crust. In: HOLLAND H.D. e TUREKIAN, K.K. (Ed.): ***Treatise on geochemistry***. Oxford: Elsevier Pergamon, v. 3, p. 1-64. v. 3, 2004.

RUHM, W.; KAMMERE, L.; HIERSCHE, L.; WIRTH, E. The $^{137}\text{Cs}/^{134}\text{Cs}$ ratio in fungi as indicator of the major mycelium location in forest soil. ***Journal of Environmental Radioactivity***, v. 35(2), p.129-148, 1997.

SANMEE. R.; DELL. B.; LUMYONG. P.; IZUMORI. K.; LUMYONG S. Nutritive value of popular wild edible mushrooms from northern Thailand. ***Food Chemistry***, v.82, p. 527-532, 2002.

Schorsch, H.D. The regional geology, mineralogy and geochemistry of the Poços de Caldas alkaline complex, Minas Gerais, Brazil. Poços de Caldas Report nº 1. Indústrias Nucleares do Brasil. ***Poços de Caldas Project***, p. 1-36, 1991.

SMITH, M.L.; TAYLOR, H.W.; SHARMA, H.D. Comparison of the post-Chernobyl ^{137}Cs contamination of mushroom from eastern Europe, Sweden, and North America. ***Applied and Environmental Microbiology***, v. 59(1), p. 134-139, 1993.

SKARLOU, V.; FRISSEL, M.J.; TWINING, J.R.; WASSERMAN, M.A.; DJINGOVA, R.; SCHULLER, P.; JIANGUO, L.; SACHDEV, P.; UCHIDA, S.; SANZHARAVA, N.; AL-ODAT, M.; TOPCUOGLU, S.; WANG, J. J.; PRISTER, B; ROBISON, W. L.; QUANG N.H. Generic TF- values for Cs and Sr. In ESNA, ***European Organization for New Methods in Agriculture***. Greece. 2001.

SOHRABI, M. The state-of-the-art on worldwide studies in some environments with elevated naturally occurring radioactive materials (NORM). ***Applied Radiation and Isotopes***. v. 49(3), p. 169-188, 1998.

SUGIYAMA, H.; TERADA, H.; SHIBATA, Y. M.; KATO, F. Radiocesium concentration in wild mushrooms and characteristics of cesium accumulation by the edible mushrooms (*Pleurotus ostreatus*). ***Journal of Health Science***, v. 46(5), p. 370-375, 2000.

SZANTO, Z.; HULT, M.; WATJEN, M.; ALTZITZOGLU, T. Current radioactivity content of wild edible mushrooms: a candidate for an environmental reference material. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***, v. 273(1), p. 167-170, 2007.

SZELES, M.S.M.F. ***Avaliação da contaminação radiológica de um solo agrícola nas proximidades de um mina de urânio***. 1994. Tese (Doutorado) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

TADDEI, M.H.T.; SILVA, N.C.; FERNANDES, E.A.N.; CIPRIANI, M. Determination of alpha-emitting isotopes of uranium and thorium in vegetable and excreta. ***Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry***. v. 248 (2), p. 483-486, 2001.

TADDEI, M. H. T.; SILVA, N. C.; MACACINI, J. F. ***Determinação de Ra-226, Ra-228 e Th-228 em Couve (Brassica Oleracea Acephale) numa Região de Elevada Radioatividade Natural***. In: III Encontro Nacional de Biociências Nucleares. Gramado. Anais do III Encontro Nacional de Biociências Nucleares, 2001.

TAUHATA, L.; ALMEIDA, E.S. ***Radiações Nucleares***. IRD/CNEN, Rio de Janeiro, Brasil, 1990.

TURKEKUL, I.; ELMASTAS, M.; TUZEN, M. Determination of iron, copper, manganese, zinc, lead, and cadmium in mushroom samples from Tokat, Turkey. ***Food Chemistry***, v. 84, p. 389-392, 2004.

UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. "Sources and effects of ionizing radiation". New York: UNSCEAR, 652p. 2000.

VAARAMAA, K.; ARO, L.; SOLATIE, D.; LEHTO, J. Distribution of ^{210}Pb and ^{210}Po in boreal forest soil. ***Science of the Total Environment***, v. 408, p. 6165-6171, 2010.

VASCONCELLOS, L. M. H.; AMARAL, E. C. S.; VIANNA, M. E.; FRANCA, E. P. Uptake of ^{226}Ra and ^{210}Pb by food crops cultivated in a region of high natural

radioactivity in Brazil. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 5, p. 287-302, 1987.

WASSERMAN, M.A.V.; PEREZ, D.V.; FERREIRA, A.C.; CONTI, C.C.; ROCHEDO, E.R.R.; BARTOLY, F.; VIANA, A.G.; MOURA, G.P.; POQUET, I.C. Valores de Transferência Solo-Planta de Cs-137 em Solos Agro-Ecológicos Tropicais. **Revista Brasileira de Pesquisa e Desenvolvimento**, v. 4, p. 737-741, 2002.