AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**AVALIAÇÃO DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM MÁRMORES E GRANITOS
COMERCIAIS DO ESTADO DO ESPÍRITO SANTO**

REGINALDO RIBEIRO DE AQUINO

**Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências na Área
de Tecnologia Nuclear - Aplicações**

Orientadora:

**Profa. Dra. Brigitte Roxana Soreanu
Pecequilo**

**São Paulo
2015**

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

**AVALIAÇÃO DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM MÁRMORES E GRANITOS
COMERCIAIS DO ESTADO DO ESPÍRITO SANTO**

REGINALDO RIBEIRO DE AQUINO

**Tese apresentada como parte dos requisitos
para obtenção do grau de Doutor em
Ciências na Área de Tecnologia Nuclear-
Aplicações.**

Orientadora:

Dra. Brigitte Roxana Soreanu Pecequilo

**SÃO PAULO
2015**

Dedico este trabalho à
minha Mãe, Pai e Irmão e demais Familiares.

E em memória a minha Avó.

"O silêncio eterno desses espaços infinitos me apavora"

Agradecimentos

- Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares pela oportunidade de realizar este trabalho.
- À Comissão Nacional de Energia Nuclear por viabilizar este estudo.
- À Dra. Brigitte Roxana Soreanu Pecequilo pela oportunidade, orientação, acompanhamento, por todo o conhecimento que me transmitiu em ensinamento e por toda a paciência e pelas merecidas broncas.
- A Dra. Bárbara Paci Mazzilli, pelo o uso da infraestrutura do LRA.
- A Dra. Linda V.E. Caldas, pelo apoio inicial e atenção.
- A Dra. Sandra Regina Damatto pelas várias observações e críticas ao meu trabalho.
- Ao Dr. Paulo Sérgio Cardoso da Silva, pela disponibilidade, apoio e críticas bem vindas em várias etapas deste trabalho que por várias vezes ajudaram a tornar este trabalho melhor.
- Ao Dr. Marcos Antônio Scapin pelo incentivo e dicas ao trabalho.
- Ao M. Sc. Marcelo Bessa que por várias vezes compartilhou seu conhecimento comigo tornando este trabalho muito mais completo.
- Ao Dr. Lúcio Leonardo por toda a ajuda e apoio.
- A Dra. Maria Cecília Salvadori pelo conhecimento compartilhado e comentários incentivadores que ajudaram a desenvolver uma parte deste trabalho.

- A minha Tia Marinéa pelas palavras, apoio e conselhos sempre bem vindos.
- Aos meus pais e irmão pelo apoio a todo o momento.
- Ao grande amigo Dr. Ademar de Oliveira Ferreira que me deve uma feijoada.
- As amigas M.Sc. Fernanda Cavalcante, M.Sc. Elaine Wirney Martins, Crislene Mateus e Alice M. R. Costa e ao amigo Leandro M. da Fonseca e para todos os demais que fiz aqui no Laboratório de Radiometria Ambiental (LRA) pelo apoio e incentivo.

Tese editada em software livre LibreOffice.org 4.3.6
Gráficos desenvolvidos em software livre GNUPlot 5.1.0
Tratamento estatístico realizado em softwares livres Bioestat 5.3 e Past 3.0

AVALIAÇÃO DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM MÁRMORES E GRANITOS COMERCIAIS DO ESTADO DO ESPÍRITO SANTO

Reginaldo Ribeiro de Aquino

RESUMO

Neste trabalho foram determinadas as concentrações dos radionuclídeos naturais ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de granitos e mármore, abrangendo as principais lavras de extração do estado do Espírito Santo, sudeste do Brasil. Para cada sítio de estudo, três amostras foram seladas em frascos de 100 ml de polietileno de alta densidade. Após espera de aproximadamente 4 semanas para atingir o equilíbrio secular das séries do ^{238}U e ^{232}Th , as amostras foram medidas por espectrometria gama de alta resolução e o espectro analisado com o software WinnerGamma. A correção da auto-absorção foi realizada para todas as amostras utilizando expressão e método desenvolvidos para este fim. A concentração do ^{226}Ra foi determinada pela média ponderada das concentrações do ^{214}Pb e ^{214}Bi , a concentração de ^{232}Th pela média ponderada das concentrações dos ^{228}Ac , ^{212}Pb e ^{212}Bi e a concentração de ^{40}K pela sua transição única de 1460 keV. O equivalente em rádio e o índice gama foram obtidos a partir das concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K . O radônio emanado foi medido em câmara de exalação usando a técnica de detectores passivos de estado sólido (SSNTD) sendo estes expostos em monitor NRPB/SSI-H. Na exposição foi utilizado um detector comercial CR-39® e um plástico de fabricação nacional denominado Durolon® sendo caracterizado para este fim pela técnica desenvolvida denominada dupla exposição e fator de sensibilidade intrínseca. O plástico caracterizado mostrou-se eficiente para a aplicação e o fator de calibração correspondendo a $1,6 \pm 0,1$ traços $\text{cm}^{-2}(\text{kBq m}^{-3}\text{dia})^{-1}$ em relação ao fator para o CR-39 que equivale a $2,8 \pm 0,2$ traços $\text{cm}^{-2}(\text{kBq m}^{-3}\text{dia})^{-1}$. O detector mostrou maior eficiência para doses mais elevadas. A atividade determinada por detecção passiva mostrou atividades variando de $100 \pm 10 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ até $2400 \pm 300 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, destacando-se a maior taxa de exalação para o granito Iberê Mombasa. Para os mármore foram determinados valores variando entre $80 \pm 10 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ até $200 \pm 25 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$ destacando os mármore Cintilante e Branco com maiores valores determinados. Os valores

determinados para a taxa de exalação superficial apresentam-se aproximadamente iguais com exceção dos granitos Iberê Mombasa e Iberê Prado que apresentaram valores acima de $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$. As medidas por espectrometria gama mostraram que as concentrações de ^{226}Ra variaram de $1,9 \pm 0,2 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ a $483 \pm 55 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, com o maior valor para o granito Iberê Mombasa. As concentrações de ^{232}Th variaram de $3,2 \pm 0,4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ a $224 \pm 6 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, com o maior valor determinado para o granito Cinza Corumbá. As concentrações de ^{40}K variaram de $8,8 \pm 1,8 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ a $1642 \pm 167 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, com o maior valor determinado para o granito Iberê Vitara. O cálculo do equivalente em rádio mostrou que a maioria das amostras podem ser definidas como categoria-I (aplicação civil) abaixo de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, exceto para os granitos Cinza Corumbá, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa que podem ser classificados como categoria II (até $740 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$). A maioria dos granitos avaliados mostraram índices de exposição interno e externos abaixo de $1,0 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$, exceto os granitos Cinza Corumbá, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa que superaram este valor entre $1,0$ a $3,2 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$ deste índice. Para a exposição anual, apenas os granitos Cinza Corumbá, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa superaram o limite de $1,5 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$. Para os índices de exposição alfa apenas os granito Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa são limitados a confecção de material de construção para aplicações superficiais. Entretanto, se considerando o índice de exposição gama, os granitos Cinza Corumbá, Cinza Andorinha, Amarelo Icarai, Cinza Ocre, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa terão aplicação controlada. Conclui-se que os granitos em sua maioria e todos os mármore avaliados apresentam aplicações possíveis em diferentes setores de atividade e para diferentes finalidades e que os granitos que excedem os índices não devam ser aplicados em interiores de residências.

ASSESSMENT OF NATURAL RADIOACTIVITY IN COMMERCIAL MARBLE AND GRANITE OF ESPÍRITO SANTO STATE

Reginaldo Ribeiro de Aquino

ABSTRACT

In this work, the concentrations of natural radionuclides ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in granite and marble samples were determined, considering the main extraction mining of Espírito Santo state, southeastern Brazil. For all study sites, three samples were sealed in 100 ml high density polyethylene bottles. Each sample rested for 4 weeks to reach the secular equilibrium of ^{238}U and ^{232}Th series before measured by high resolution gamma spectrometry, and the acquired spectra were analyzed with the software WinnerGamma. The self-absorption correction was considered for all samples, using an expression and method specially developed for this purpose. The concentration of ^{226}Ra was determined by the weighted arithmetic mean of the concentrations of ^{214}Pb and ^{214}Bi , the concentration of ^{232}Th by the weighted arithmetic mean of the concentrations of ^{228}Ac , ^{212}Pb and ^{212}Bi and the concentration of ^{40}K by its single 1460 keV transition. The radium equivalent and gamma index were calculated from the activity concentrations of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K . The emanated radon was measured using an exhalation chamber and the passive detector technique, with a solid state nuclear tracks detectors (SSNTD) being exposed in NRPB/SSI-H dosimeters. During exposure, a commercial detector CR-39[®] and a national plastic called Durolon[®] were used, the last was characterized for this purpose using a technique called double exposure and sensitivity intrinsic factor. The characterized plastic was efficient for the application and the calibration factor corresponded to $1.60 \pm 0.10 \text{ tracks}\cdot\text{cm}^2\cdot(\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day})^{-1}$ in relation to the CR-39 factor, equivalent to $2.8 \pm 0.2 \text{ tracks}\cdot\text{cm}^2\cdot(\text{kBq}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{day})^{-1}$. The detector showed a higher efficiency at a higher dose. The activities determined by passive detection varied from $100 \pm 10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ up to $2400 \pm 300 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$, highlighting the biggest exhalation rates for granite Iberê Mombasa. Considering the marbles, activity values varied from $80 \pm 10 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ up to $200 \pm 25 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ highlighting only the Cintilante and

Branco Extra with higher values. The values obtained for surface exhalation rate were approximately equal, except for granites Iberê Mombasa and Iberê Prado with values above $1 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}$. The measures by gamma spectrometry showed that the ^{226}Ra concentrations varied from $1.9\pm 0.2 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ up to $483\pm 55 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, with the highest value for granite Iberê Mombasa. The ^{232}Th concentrations ranged from $3.2\pm 0.4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ to $224\pm 6 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, whose largest value was observed for the gray granite Corumbá. The ^{40}K concentrations ranged from $8.8\pm 1.8 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ up to $1642\pm 67 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, with the largest value observed for granite Iberê Vitara. The radio equivalent value showed that most samples can be defined as category I, below $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, except for the granites Cinza Corumbá, Iberê Crema Bordeaux and Iberê Mombasa that can be classified as class II (up to $740 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$). The evaluated granites show internal and external exposure rates below $1.0 \text{ mSv}\cdot\text{y}^{-1}$ except the granites Cinza Corumbá, Iberê Crema Bordeaux and Iberê Mombasa that exceed the value range of 1.0 to $3.2 \text{ mSv}\cdot\text{y}^{-1}$ for this index. For the annual exposure dose, only the granites Gray Corumbá, Iberê Crema Bordeaux and Iberê Mombasa exceeded the $1.5 \text{ mSv}\cdot\text{y}^{-1}$. For the alpha exposure index only the Iberê Crema Bordeaux and Iberê Mombasa granites indicate limitations when applying as surface material. However, considering the gamma exposure index, the granites Cinza Corumbá, Cinza Andorinha, Amarelo Icarai, Cinza Ocre, Iberê Crema Bordeaux and Iberê Mombasa have controlled application. In conclusion, the evaluated granites and all marbles evaluated have viable applications in different activity sectors and for different purposes and the granites that exceeded the proposed limits should not be applied in the interior of residences

SUMÁRIO

	Página
1. INTRODUÇÃO	1
1.1 Radioatividade Natural	1
1.1.1 Radioatividade natural e séries naturais.....	1
1.2 Justificativa do Trabalho	4
1.3 Aspectos Gerais Sobre os Sítios Estudados.....	8
1.3.1 Aspecto climatológico, geográfico e populacional do Espírito Santo.....	8
1.3.2 Geologia dos sítios abordados.....	11
1.3.3 Importância econômica da extração das pedras ornamentais no Espírito Santo	11
1.4 Objetivos	12
1.4.1 Originalidade	13
2 METODOLOGIA E DESENVOLVIMENTO.....	14
2.1 Amostras.....	14
2.1.1 Amostras de mármore	16
2.1.2 Amostras de granitos	17
2.2 Espectrometria Gama	19
2.2.1 Pré tratamento para a espectrometria gama HPGe	20
2.2.2 Espectrômetro gama e contagem das amostras.....	21
2.3 Fator Percentual de Correção por Atenuação Gama.....	23
2.3.1 Arranjo experimental para atenuação gama.....	26
2.4 Cálculo da Concentração de Atividade do Radionuclídeo e Índices Dosimétricos.....	27
2.4.1 Cálculo da concentração de atividade a partir da emissão gama.....	27
2.4.2 Equivalente em rádio.....	30
2.4.3 Índice de risco a exposição gama externo e interno	31
2.4.4 Estimativa de dose absorvida no ar	32
2.4.5 Índice de exposição alfa	33
2.4.6 Índice de exposição gama.....	33
2.5 Determinação do Radônio	35
2.5.1 Preparo e revelação para SSNTD	35

2.5.2 Cálculo da concentração de atividade a partir dos SSNTD.....	37
2.5.3 Taxa de exalação do radônio.....	38
3 CARACTERIZAÇÃO DE UM PLÁSTICO COMERCIAL COMO SSNTD.....	39
3.1 Caracterização dos Traços Válidos no Processo de Contagem	39
3.2 Irradiação e Dispositivo Irradiador.....	42
3.3 Fator de Sensibilidade e Calibração a Partir da Sensibilidade Intrínseca Relativa.....	44
3.4 Ensaios de Validação Estatística.....	46
3.4.1 Z-Score.....	46
3.4.2 Verificação da resposta de detecção do Durolon® pelo teste do χ^2	46
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO	48
4.1 Resultados para Espectrometria Gama	48
4.1.1 Fatores de atenuação gama para as amostras analisadas.....	48
4.1.2 Concentrações de atividade e equivalente em rádio	51
4.1.3 Índice de risco a exposição gama externa e interna e a estimativa de dose efetiva anual.....	55
4.1.4 Índices de exposição alfa e gama.....	58
4.2 Resultados para a Caracterização do Durolon® como SSNTD.....	61
4.2.1 Resultados da caracterização pós-ataque químico por microscopia de força atômica e microscopia digital.....	61
4.2.2 Obtenção do fator de calibração e sensibilidade pela técnica do fator de sensibilidade intrínseca.....	65
4.2.3 Resultados da verificação da resposta de detecção do Durolon®	68
4.3 Medidas de radônio.....	69
4.3.1 Concentração de radônio determinada para os granitos e mármore aplicando o Durolon®	69
4.3.2 Taxa de exalação.....	72
5 CONCLUSÕES	75
5.1 Fator de Calibração e Sensibilidade, Medidas de Radônio.....	75
5.2 Espectrometria Gama e Índices Radiométricos.....	76
5.3 Aplicabilidade Conforme Índices Avaliados.....	77

6 SUGESTÕES PARA NOVOS TRABALHOS.....	79
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	80
APENDICE A – MOSAICOS DAS AMOSTRAS DE MÁRMORES E GRANITOS.....	88
APENDICE B – CURVAS E FUNÇÕES DE ATENUAÇÃO GAMA.....	90
APENDICE C – CÓDIGOS FONTE GNUPlot 5.1.....	95

FIGURA 1: Famílias de decaimento radioativo. À esquerda o potássio, ao centro a série do tório e a direita a série do urânio. (NNDC, 2015)).....	2
FIGURA 2: Imagem exemplo obtida com o microscópio Digital Microscope com aumento de 40x para os detectores CR-39 (A) e Durolon (B) expostos à amostra de granito Santa Helena em câmara de emanção. (Imagem: Acervo pessoal).....	8
FIGURA 3: Espírito Santo no Brasil, América do Sul. Escala de 1:700.000.(IBGE, 2015)	9
FIGURA 4: Cartograma de relevo do espírito Santo. Em verde destaca-se a região de planície litorânea e em tons de amarelo a laranja a região serrana. (IBGE, 2015).....	10
FIGURA 5: Localização das lavras de extração. IBGE (2015)	15
FIGURA 6: Mosaico de amostras comerciais de mármore do Estado do Espírito Santo.....	16
FIGURA 7: Componentes do mármore: A) Calcita e B) Dolomita.....	16
FIGURA 8: Imagens aéreas de lavras de extração de mármore na região de Castelo. Foto cortesia POLITA.....	17
FIGURA 9: Mosaico de amostras de granitos. (Imagem: Acervo pessoal).....	18
FIGURA 10: Lavra de extração de granito no noroeste do Estado do Espírito Santo. (Imagem: GAZETA DO NORTE, 2015).....	18
FIGURA 11: Esquema de montagem de um dos espectrômetros gama utilizado neste trabalho.	19
FIGURA 12: Processo de moagem. A) Pilão pré-processamento, B) conjunto panela, tampa, êmbolo e anel, C) acondicionamento amostra pré-processada D) amostra moída e homogeneizada, E) moinho. (Imagem: Acervo pessoal).....	20
FIGURA 13: Conjunto frasco amostrador F-100HDPE, e amostra selada e pronta para ser analisada. (Foto: Acervo pessoal)	21

FIGURA 14: A) Detector gama. B) Parte inferior da blindagem mostrando o dewar de resfriamento (DWR-30) e assinalado parte do detector. C) Vista interna da blindagem convencional de chumbo. D) frasco amostrador F100 sobre o detector HPGe. (Imagem: Acervo pessoal)....	22
FIGURA 15: Eletrônica associada. A) Da direita pra esquerda, são vistas a fonte de alimentação ORTEC 659 e o amplificador ORTEC EG&G 672. B) Ao centro é visto o analisador multicanal ORTEC EG&G 919 Spectrum Master. (Imagem: Acervo pessoal).....	22
FIGURA 16: Curva característica de exemplo do percentual de atenuação em relação energia.....	23
FIGURA 17: Arranjo experimental para atenuação gama.....	26
FIGURA 18: Arranjo experimental. A) Conjunto fonte, colimador. B) Suporte lucite para o colimador. C) Arranjo disposto blindagem. D) Detalhe da amostra.....	26
FIGURA 19: Arranjo experimental para detecção do ^{222}Rn . A) Conjunto de detectores em dosímetro NRPB/SSI-H, B) câmara de acumulação e amostra, ao lado tampa e dosímetro NRPB/SSI fixado na tampa. (Imagem: Acervo pessoal).....	35
FIGURA 20: À esquerda banho-maria utilizado para revelação dos detectores e a direita microscópio digital utilizado para a leitura dos detectores. (Imagem: Acervo pessoal).....	36
FIGURA 21: Imagem de traços após ataque químico em um Durolon® obtidas por microscopia de força atômica. (Imagem: Acervo pessoal)	39
FIGURA 22: Imagem do Durolon® após ataque químico, obtidas em um microscópio digital convencional. (Imagem: Acervo pessoal).....	40
FIGURA 23: Imagem Microscópio AFM convencional configurado na modalidade AFM-Tapping Mode. (Imagem: Acervo pessoal).....	41
FIGURA 24: Dispositivo estanque irradiador. A) Medidor de fluxo, B) Fonte PYLON-RN1023, C) Cronômetro, D) Bomba de vácuo, E) Câmara estanque de irradiação, F) Medidor de pressão. (Imagem: Acervo pessoal).....	42
FIGURA 25: Diagrama de operação da fonte de irradiação.....	43

FIGURA 26: Curva de atenuação da amostra de granito 01-Arabesco claro.....	48
FIGURA 27: Atenuação gama para as amostras analisadas. A) visão geral. B) Energias iniciais (200 a 800keV). C) Energias acima de 800keV.....	50
FIGURA 28: Comparativo entre as concentrações de atividade para ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K com o Ra_{eq} par as amostras de granito avaliadas. Em destaque os valores que superam a marca de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de Ra_{eq}	52
FIGURA 29: Comparativo entre as concentrações de atividade para ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K com o Ra_{eq} par as amostras de mármore avaliadas.....	53
FIGURA 30: Comparativo entre os índices de risco a exposição gama externo e interno e a estimativa de dose efetiva anual para as amostras de granito avaliadas.....	56
FIGURA 31: Comparativo entre os índices de risco a exposição gama externo e interno e a estimativa de dose efetiva anual para as amostras de mármore avaliadas.....	57
FIGURA 32: Índices de exposição alfa e gama e os limites para uso interno em residências, sugeridos pela Comissão Europeia (EC, 1999) para as amostras de granito.....	59
FIGURA 33: Comparativo entre os índices de exposição alfa e gama para as amostras de Mármore.....	60
FIGURA 34: Imagem sem tratamento obtida com microscópio digital em modo transmissão.....	61
FIGURA 35: Análise por AFM de defeitos na estrutura superficial do Durolon®. A) Imagem 3D da estrutura avaliada. B) Imagem de diferenciação da estrutura. C) Profundidade da estrutura da mancha clara no detector.....	62
FIGURA 36: Análise AFM sobre a profundidade dos traços e picos no Durolon®. A) Estrutura 3D analisada. B) Medida do traço de menor profundidade e pico. C) Corte do traço maior e estrutura defeituosa similar ao traço.....	62
FIGURA 37: Análise AFM sobre a altura dos patamares no Durolon®. A) Estrutura 3D analisada. B) Medida do patamar.....	63
FIGURA 38: Resultado tratamento do ganho em imagem.....	64
FIGURA 39: Diâmetros dos traços e histograma de diâmetros.....	64

FIGURA 40: Correlação entre as densidades de traços nos detectores Durolon® e CR-39.....	66
FIGURA 41: Índice Z-Score entre os detectores e a atividade padrão.....	67
FIGURA 42: Atividade determinada para os detectores Durolon® (DR) e CR-39 (CR).....	67
FIGURA 43: Comparativo para as concentrações de radônio determinada para os granitos e mármorees.....	71
FIGURA 44: Taxa de exalação superficial para as amostras de granitos e mármorees avaliados.....	73
FIGURA 45: Taxa de exalação por massa para as amostras de granitos e mármorees avaliados.....	74

TABELA 1 Localização das amostras de mármore e granito do Espírito Santo.....	14
TABELA 2 Transições gama selecionadas para a determinação da curva de atenuação	25
TABELA 3 Transições gama utilizadas para a determinação da concentração de radionuclídeos.....	28
TABELA 4 Limites para o equivalente em rádio recomendados para materiais de construção	30
TABELA 5 Tempo anual para estimativa de dose, considerando a atividade realizada durante o dia.....	32
TABELA 6 Valores sugeridos para avaliação do limite de índice gama para materiais de construção (EC, 1999)	34
TABELA 7: Fatores de correção para atenuação para as amostras de granito por agrupamento de densidade aparente.....	49
TABELA 8: Fatores de correção para atenuação para as amostras de mármore por agrupamento de densidade aparente.....	50
TABELA 9: Concentrações de Atividades e Radio equivalente para as amostras de granitos.....	51
TABELA 10: Concentrações de Atividades e Radio equivalente para as amostras de mármore.....	53
TABELA 11: Resultados reportados em literatura e a média determinada para as concentrações nas rochas estudadas.....	54
TABELA 12: Índice de exposição interna e externa, dose anual para os granitos avaliados.....	55
TABELA 13: Índice de exposição interna e externa, dose anual para os mármore avaliados.....	57
TABELA 14: índices de exposição gama para os granitos avaliados.....	59
TABELA 15: índices de exposição gama para os mármore avaliados.....	60
TABELA 16: Densidade de traços, sensibilidade intrínseca relativa fatores determinados.....	65

TABELA 17: Atividades determinadas para o utilizando o CR-39 e o Durolon®	66
TABELA 18: Avaliação da resposta do detector.....	68
TABELA 19: Atividade determinada para os granitos por detecção passiva com Durolon®	69
TABELA 20: Atividade determinada para os mármorees por detecção passiva com Durolon®	70
TABELA 21: Taxa de exalação superficial e por massa para os granitos avaliados.....	72
TABELA 22: Taxa de exalação superficial e por massa para os mármorees avaliados.....	73
TABELA 23: Percentual de aceitabilidade conforme os índices avaliados.....	77

INTRODUÇÃO

1.1 Radioatividade Natural

A radioatividade natural é um fenômeno comum em toda a crosta terrestre oriundo em parte de radionuclídeos naturais como ^{232}Th (meia-vida de $1,4 \times 10^{10}$ anos), ^{235}U (meia vida de $7,038 \times 10^8$ anos) e ^{238}U (meia-vida de $4,5 \times 10^9$ anos) e seus produtos de decaimento e o ^{40}K (meia-vida de $1,27 \times 10^9$ anos) (FIG.1), conhecidos como radionuclídeos primordiais, cujas existências, se considerado o tempo total de vida, podem ser considerados constantes no espaço e no tempo (EISENBUD, 1987).

Também constituem a fonte natural de irradiação, os radionuclídeos de origem cosmogênica como o ^7Be , ^{10}Be , ^{14}C , ^{22}Na , ^{39}Cl , ^{35}S formados a partir da interação da radiação cósmica com a atmosfera terrestre podendo variar conforme a latitude e longitude (TYKVA e SABOL, 1995). Estes radionuclídeos formam a principal fonte de irradiação interna e externa do corpo humano (UNSCEAR, 2000).

Para as frações de radioatividade natural detectável, 55,8% é atribuído ao ^{226}Ra , 14% para o ^{232}Th , 13,8% para o ^{40}K e 15% para os demais radionuclídeos de origem cosmogênica, considerando locais de radioatividade natural não anômala. Para tais regiões a fração de abundância relativa em rochas para o urânio corresponde a cerca de $2,7 \mu\text{g} \cdot \text{g}^{-1}$ sendo esta porção constituída de 99,3% de ^{238}U e 0,7% de ^{235}U (TYKVA e SABOL, 1995; DA SILVA *et al*, 2003; IAEA-TECDOC-1363, 2003).

A exposição do homem às radiações ionizantes, naturais ou não, pode ocorrer de duas formas: irradiação interna e externa. A irradiação interna ocorre devido à inalação ou ingestão de radionuclídeos e a irradiação externa ocorre devido à exposição gama oriunda de processos de decaimento radioativo de radionuclídeos naturais presentes em solos, atmosfera, materiais de construção ou radiação cósmica.

1.1.1 Radioatividade natural e séries naturais

O tório é cerca de quatro vezes mais abundante em relação ao urânio, possuindo um único isótopo ^{232}Th natural e, o potássio correspondendo a uma fração média de 2,5% sendo observados os isótopos ^{39}K (abundância de 93,08%), ^{40}K (abundância de 0,012%) e ^{41}K (abundância de 6,9%) (STEINHÄUSLER *et al*, 1994).

FIGURA 1: Famílias de decaimento radioativo. À esquerda o potássio, ao centro a série do tório e a direita a série do urânio. (NNDC, 2015)

Em algumas regiões do mundo, devido a processos de sedimentação que levam à formação de minerais contendo tório, a concentração de atividade deste radionuclídeo nas rochas alcalinas pode ultrapassar $500 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. A ocorrência mais importante de membros da série do ^{232}Th é a monazita, um mineral de terras raras altamente insolúvel, presente em algumas areias de praias (UNSCEAR, 1983).

O Brasil está entre os países que possuem os maiores e mais importantes depósitos desse mineral no planeta (RIEDEL e EISENMENGER, 1999). Dentre as maiores anomalias na concentração de tório no solo no Brasil estão os depósitos de areia monazítica de Guarapari, no Estado do Espírito Santo (EISENBUD, 1987) onde é encontrada a principal reserva de ^{232}Th e as areias da Praia de Camburí onde é encontrada a maior reserva de ^{226}Ra (AQUINO, 2010; BARROS, 2011).

No estado do Estado do Espírito Santo estão situadas as principais e maiores indústrias de mármore e granitos do país, sendo responsável por uma produção em torno de 60% do mercado nacional e, um dos maiores exportadores de pedras ornamentais do mundo, respondendo por cerca de 78% das exportações Brasileiras (GAZETA ONLINE, 2013). Algumas das principais lavras destas rochas ornamentais estão concentradas nas regiões de Cachoeiro de Itapemirim e Castelo, perto da região de Guarapari (AQUINO¹ e PECEQUILO, 2011).

Os radionuclídeos naturais primordiais presentes nos materiais de construção são os radionuclídeos que compõem as séries radioativas naturais do ^{238}U , ^{232}Th e do ^{235}U (FIG.1) (NCRP-97, 1998) e são responsáveis pela exposição do homem à radiação natural. Tal exposição pode ocorrer por duas formas: irradiação externa devido à emissão gama no processo de decaimento radioativo dos radionuclídeos naturais presentes nestes solos, atmosfera, materiais de construção e radiação cósmica e irradiação interna, devido à ingestão ou inalação de radionuclídeos como o ^{222}Rn (meia-vida de 3,8 dias) e o ^{220}Rn (meia-vida de 55,6 segundos) e seus produtos de decaimento radioativo (MEDHAT, 2009).

Os processos geoquímicos que determinam as trajetórias das concentrações minerais em rochas são dependentes dos processos de fusão e solidificação das rochas. A radioatividade das rochas ígneas apresenta uma considerável variação em função das características químicas, mineralógicas, petrográficas e estruturais (ALBARÈDE, 2011).

A abundância de urânio e tório nas rochas ígneas, além da concentração inicial depende, sobretudo, da história pós-cristalização das rochas. Os níveis radioativos podem ser relacionados a alguns fatores tais como conteúdo de SiO_2 e idade relativa em séries de formação similar. Para tais condições, a abundância e radioatividade provêm de três fontes: minerais acessórios moderadamente radioativos, minerais essenciais fracamente radioativos, material radioativo localizado entre os grãos e em defeitos estruturais do cristal (WERNICK, 2004).

Algumas fontes de urânio e tório também podem estar presentes em inclusões líquidas nos minerais e em fluidos intergranulares. O potássio é um elemento muito frequente nos minerais, principalmente nos alumino-silicatos como os K-feldspatos¹ (KAlSi_3O_8) podendo conter até 16,9% de K_2O e as micas. O conteúdo de K_2O nas rochas graníticas varia de cerca de 0,5% nos leucogranitos sódicos até mais de 8% nos leucogranitos potássicos. Riólitos e sianitos potássicos também contêm 8% ou mais de K_2O (WERNICK, 2004; MACHADO, *et al*, 2015).

¹ Feldspatos [Alemão: feld (campo) spath (pedra)] Designação do grupo mineral mais importante e de maior volume e ampla distribuição na crosta terrestre correspondendo a 60% das rochas sendo parte das principais bases de classificação das rochas magmáticas (MACHADO, *et al*, 2015).

1.2 Justificativa do Trabalho

Considerando o Espírito Santo detentor de 60% da extração, beneficiamento e exportação de rochas ornamentais, mensurar adequadamente a contribuição dos radionuclídeos presentes nestes materiais para a radiação de fundo, dose anual e principais índices radiométricos torna-se de fundamental importância para a saúde das populações bem como para o valor agregado destes materiais e a adequada aplicação na construção civil destes materiais tendo em vista que a maioria dos trabalhos conhecidos privilegia a classificação petrográfica e negligencia a avaliação radiométrica destes materiais (SALAS, 2002). Como exemplo é possível citar o trecho da matéria da NBC27;

"There may be a pocket in the quarry which may have a bit higher levels of uranium," said Strenn.

Granite from Brazil or India, some of the main granite exporters, tend to have higher levels according to Liebert. Also, granite with a purplish or magenta coloration. But Strenn says all evidence points to only a minute chance of dangerous amounts of radon in granite.

I do have it in my house, I have a three year old daughter. If at all I thought it was going to harm her I wouldn't have it at all, said Strenn." NBC27, 30/04/2013

Entretanto, tal matéria não cita fontes, limites, normas técnicas ou o método de avaliação aplicado, bem como classifica apenas granitos oriundos do Brasil e Índia e não fala a respeito, por exemplo, das rochas extraídas de lavras no continente Africano ou Itália e induz ao pensamento que a coloração pura e simplesmente pode denunciar a respeito do conteúdo de minerais contendo, por exemplo, tório ou urânio.

Como via de norma para avaliação e aplicação, países como China, USA, Japão, Países Nórdicos entre outros (EC, 1999; NORDIC, 2000; GB6566-2001; USEPA, 2015), adotam como critério de aplicação de materiais naturais como material de construção rigorosas normas de avaliação radiométrica que variam em acordo com seus aspectos culturais e climatográficos, atitude que, não é percebida como preocupação no Brasil. Um exemplo disto é que ao adquirir uma rocha ornamental beneficiada e pronta para aplicação em casa não é informado ao cliente sobre a sua aplicabilidade sendo vendida tão somente por sua beleza decorativa. Tal prática pode colocar em risco a saúde da população.

Ao mesmo tempo, o negligenciar de tal avaliação gera problemas baseados na falta de informação como o enfrentado em 2008 pelo pediatra Dr Sugarman em sua casa quando uma avaliação inadequada por um suposto técnico em radioproteção utilizando de um contador Geiger-Müller², condenou granitos instalados em sua cozinha supondo que os níveis de emissão estavam cerca de dez vezes mais elevados que a radioatividade natural, levando-o a retirar os granitos com medo de que sua filha gestante fosse exposta a radiação emitida por estes. Segundo a matéria do The New York Times (MURPHY, 2008), “*What’s Lurking in Your Countertop? - O que se esconde em sua bancada?*”;

*“He went from room to room, said Dr. Sugarman, a pediatrician. But he stopped in his tracks in the kitchen, which had richly grained cream, brown and burgundy granite countertops. **His Geiger counter indicated** that the granite was emitting radiation at levels 10 times higher than those he had measured elsewhere in the house.*

*My first thought was, my pregnant daughter was coming for the weekend,” Dr. Sugarman said. When the technician told her to keep her daughter several feet from the countertops just to be safe, she said, “I had them ripped out that very day,” and sent to the state Department of Health for analysis. The granite, it turned out, contained **high levels of uranium**, which is not only radioactive but releases radon gas as it decays. **The health risk to me and my family was probably small, Dr. Sugarman said, but I felt it was an unnecessary risk.**” The New York Times, 24/07/2008*

A matéria induz a população a entender que tanto a avaliação do granito como a ação de resposta do Dr. Sugarman foram as mais corretas a serem tomadas, tendo como consequência o pensamento de que tal material é inadequado à sua vida. A matéria trouxe um impacto negativo para as exportações de rochas ornamentais brasileiras em especial aos granitos do Espírito Santo.

Diversos trabalhos também negligenciam a origem da amostra ou a sua classificação comercial ou ainda informam a sua localização parcial na esperança de que ocultando estas informações tornem a rocha ornamental isenta de tal classificação. Entretanto, o negligenciar da informação leva a generalização da

² Um contador Geiger-Müller, é um detector do tipo pulso que funciona a partir da ionização do gás em seu tubo, comumente aplicado para detecção de emissões do tipo alfa, beta, raios-X e gama tendo a amplitude do pulso detectado independente da ionização o que torna impossível a discriminação da energia da partícula incidente e o tipo de radiação (BITTELI, 2006), logo afirmar que o granito avaliado apresenta altos níveis de urânio a partir desta avaliação não é correto, pois o aparelho pode estar medindo emissões feitas por outros elementos como, por exemplo, o ⁴⁰K beta-gama emissor (FIG.1) que em geral é predominante em tais rochas.

radioatividade para todas as rochas e o desconhecimento a condenação de seu uso para quaisquer atividades na construção civil, fato que é questionável, pois a distribuição dos radionuclídeos nas rochas é variável e dependente da localização da lavra de extração. Com o propósito de estabelecer um critério de aplicabilidade, a partir da avaliação radiométrica, aplica-se o Equivalente em Rádio (Ra_{eq}) que classifica, a partir deste índice, os materiais de construção (para os quais, as rochas ornamentais podem ser inclusas) em classes de aplicabilidade (BERETKA e MATHEW, 1985) para uso interno em residências.

A presença de radionuclídeos naturais gama emissores presentes nos materiais aplicados no interior das construções leva ao risco de exposição externa e interna dos que habitam ou usam tais instalações. Para avaliar tal risco, são estudados os índices de exposição interna e externa (H_{in} , H_{ex}), bem como a dose anual (E_{ea}) em decorrência da convivência com estes materiais de construção. O risco é avaliado segundo os limites sugeridos pela ICRP(1997) para a dose anual, que são limitantes para a aplicabilidade destas rochas ornamentais em instalações internas nas residências.

Valores tais como o índice de risco a exposição gama I_γ e índice de exposição alfa devido ao radônio no ar I_α , associados com o Ra_{eq} permitem estabelecer, a partir das concentrações de atividade determinada por espectrometria gama de alta resolução (HPGe), os critérios de risco na utilização e possíveis aplicações na construção civil para os granitos avaliados. Para tanto são contrapostos os resultados determinados com limites estabelecidos em normas vigentes em outros países como, por exemplo, as normas vigentes na China (GB6566-2001) para material de construção.

A exposição ao ^{222}Rn no ar devido à emissão é reconhecida como um importante risco ao sistema respiratório, principalmente pela incorporação dos seus descendentes de meia-vida curta ^{218}Po (3,05 min), ^{214}Pb (26,8 min), ^{214}Bi (19,9 min), ^{214}Po ($1,64 \times 10^{-4}$ s), sendo que o ^{218}Po e ^{214}Po são emissores alfa, radiação com maior transferência linear de energia responsável pelo aumento na incidência de câncer no pulmão (UNSCEAR, 2000).

Os filhos, diferentemente do radionuclídeo pai, podem facilmente se associar a partículas de aerossóis, ou qualquer outro tipo de superfície, fenômeno conhecido como *plate-out*. Neste processo, estando ou não associados a aerossóis, os filhos

podem ser inalados, se depositando no pulmão (Safety Report Series 33, 2003). Segundo a Organização Mundial de Saúde (WHO, 2007), o radônio e sua progênie são os maiores contribuidores para a dose de radiação recebida pela população mundial, sendo o radônio reconhecido como a segunda maior causa de câncer de pulmão depois do tabaco.

Em princípio, a quantidade de ^{222}Rn , presente em rochas e solos depende da concentração de ^{238}U , contudo isto sozinho não é decisivo na determinação de ^{222}Rn no ar, pois a difusão do radônio devida a emissão a partir do grão (no momento em que o radônio deixa o grão após o decaimento denomina-se emissão) depende da composição mineral e da distribuição de poros das rochas (FAHEEM e MATIULLAH, 2008). O radônio emanado do grão será transportado por difusão gasosa entre os poros da rocha e exalará pela superfície da rocha, processo denominado exalação. Assim torna-se importante fazer também medidas da taxa de exalação de radônio comparando, por exemplo, com os limites estabelecidos pela USEPA (United State Environment Protection Agency) que adota como limite, para que alguma precaução seja tomada, valores acima de 4 pCi/L (148 Bq/m³) de radônio no ar (USEPA, 2015).

Para medir a taxa de exalação de radônio foi aplicada a técnica bem estabelecida e mundialmente aceita de detecção passiva em câmara de emissão selada, utilizando detectores poliméricos sólidos de traços nucleares tais como o CR-39 e o Duroton[®] cuja aplicação foi desenvolvida e aprimorada para tal fim neste trabalho (TUFAIL *et al*, 2000; AQUINO *et al*, 2014).

Tendo em vista a necessidade da expansão das avaliações do radônio em ambientes, justificou-se ainda o desenvolvimento de uma tecnologia nacional que reduza custo e beneficie a aplicabilidade da técnica, aquisição de detectores, tempo de exposição e leitura, proporcionando assim a possibilidade de expansão da aplicação por diversos laboratórios no país. Para tal fim, o detector Duroton[®] (FIG.2B) pode representar uma relação custo/benefício significativamente satisfatória se comparado ao convencional e importado CR-39 (FIG.2A).

FIGURA 2: Imagem exemplo obtida com o microscópio Digital Microscope® com aumento de 400x para os detectores CR-39 (A) e Durolon® (B) expostos a amostra de granito Santa Helena em câmara de emanção. (Imagem acervo pessoal).

1.3 Aspectos Gerais Sobre os Sítios Estudados

Estudos realizados em várias partes do mundo têm medido concentrações de atividade de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em rochas graníticas e mármore que tem aplicação na construção civil como revestimentos internos ou rochas ornamentais e também em rochas utilizadas como materiais de construção como agradados (brita), cimentos, areia e cal (PAVLIDOU *et al*, 2006; XIENWEI e XIAOLAN, 2007). Alguns estudos têm medido também a taxa de emanção de radônio (PAKOU *et al*, 1994; RIGHI e BRUZZI, 2006; FAHEEM e MATIULLAH, 2008).

No Brasil, estudos realizados mediram a radioatividade natural em areias de praias, apresentaram a concentração de atividades de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em certas areias, utilizados na construção civil (BARROS *at al*, 2011; AQUINO e PECEQUILO, 2015), tem sido feitos também estudos de emanção de radônio em amostras de concretos, (BURKE, 2002), no interior de residências (VILALOBOS, 1991; NEMAN, 2000). Estes estudos têm mostrado que a principal fonte de radônio no interior de casas é devido à concentração de urânio e tório no solo, e em apartamentos, sua ocorrência é devida principalmente aos materiais de construção e rochas de revestimento e ornamental (MOURA, 2005).

1.3.1 Aspecto climatológico, geográfico e populacional do Estado do Espírito Santo

Localizado na região sudeste do Brasil, com uma população de 3.512.672 habitantes, o Estado do Espírito Santo faz fronteira a oeste e noroeste com Minas Gerais, ao sul com o Rio de Janeiro e ao norte com o estado da Bahia. Possui uma

área de 46.077,519 km² compreendida acima do trópico de capricórnio e cerca de 18° abaixo do equador (IBGE, 2015) (FIG.3).

FIGURA 3: Espírito Santo no Brasil, América do Sul. Escala de 1:700.000. (IBGE, 2015)

O clima é predominantemente tropical úmido com temperatura média anual 23 °C e volume de precipitação em torno de 1400 mm de chuva ao ano. Por sua formação geológica, o Estado do Espírito Santo é constituído de duas regiões bem definidas: uma região de planície litorânea correspondendo a cerca de 40% da área territorial denominada Baixada Espírito Santense que se eleva a altitudes superiores a 1000 m dando formação a segunda região de planalto denominada Serra Capixaba (IJSN, 2015) (FIG.4).

A região da Serra Capixaba é dividida em quatro porções distintas: A Serra do Caparaó, sudeste do estado do Espírito Santo, possuindo a maior elevação do estado e elevação média do Brasil, destacando-se o Pico da Bandeira, terceiro em elevação no Brasil com 2891 m de altitude e o Pico do Calçado com elevação de 2.849 m de altitude. A serra do Castelo que se destaca pelo Pico do Forno com 2.070 m de altitude, Serra Litorânea do Sul do Espírito Santo com elevações de 1908 m e, a Serra dos Aimorés, noroeste do Estado, apresentando as menores elevações de toda a Serra Capixaba (IBGE, 2015).

FIGURA 4: Cartograma de relevo do Estado do Espírito Santo. Em verde destaca-se a região de planície litorânea e em tons de amarelo a laranja a região serrana. (IBGE, 2015)

1.3.2 Geologia dos sítios abordados

O estado do Espírito Santo possui geografia favorável à exploração de rochas para uso na construção civil devido a sua formação rochosa, a qual se denomina geografia de mares de morros. Tais formações rochosas datam da era paleo-proterozóica à neo-proterozóica (2500Ma a 540Ma), constituídas das porções noroeste a nor-noroeste por rochas magmáticas de composição félsica e máfica, na porção central por rochas gnáissicas de origem magmática e ou sedimentar de médio grau metamórfico e rochas graníticas desenvolvidas durante o tectonismo (IEMA, 2015), na porção sul central sedimentos arenosos a argilo-carbonáticos de grau metamórfico fraco a médio e na porção su-sudoeste a oés-sudeste rochas magmáticas de composição félsica e máfica e rochas gnáissicas de origem magmática e ou sedimentar de médio grau metamórfico e rochas graníticas desenvolvidas durante o tectonismo (IEMA, 2015).

Devido a esta formação, as lavras de extração de rochas ornamentais são segmentadas no estado do Espírito Santo em rochas graníticas ao norte e, mármore ao sul, principalmente concentrados na região dos municípios de Castelo e Cachoeiro do Itapemirim.

1.3.3 Importância econômica da extração das pedras ornamentais no Espírito Santo

Rochas ornamentais são consideradas recurso natural de grande importância socioeconômica para a construção civil e matéria prima para diversos setores como indústria de móveis, arte, decoração entre outros (VARGAS *et al*, 2001).

No mundo, a produção de rochas ornamentais representa um volume de 67,5 milhões de toneladas por ano, sendo que, desta produção, 58% corresponde às rochas carbonáticas, 37% às silicáticas e 5% às ardósias. A produção brasileira corresponde a cerca de 6 milhões de toneladas por ano, estando esta dividida em 57% granitos, 17% mármore e travertinos, ficando o restante para as demais rochas. Estima-se que a grande parte da produção (cerca de 75%) seja destinada ao mercado interno da construção civil sendo que, os estados de Espírito Santo, Minas Gerais e Bahia respondem por 70% da produção total nacional. Da produção nacional o Espírito Santo é líder absoluto detendo 47% da produção total de rochas ornamentais (CHIODI, 2001; SPÍNOLA, 2004).

A extração de rochas no estado do Espírito Santo é da ordem de 2.400 mil toneladas por ano, gerando uma mão de obra direta de 20.000 empregos, estando esta produção dividida em mármore nos municípios de Cachoeiro e Castelo (sul do estado) e granitos na região norte nos municípios de Nova Venécia, Barra de São Francisco e São Gabriel da Palha onde estão localizadas as principais lavras e extração (SPÍNOLA, 2002; CHIODE, 2004; DO ESPÍRITO SANTO, 2012).

1.4 Objetivos

- Coletar amostras de granitos e mármore abrangendo a maioria das lavras em atividade no estado do Espírito Santo.
- Medir a concentração de atividade de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K e determinar os índices relacionados a partir das concentrações destes elementos (equivalente em rádio e o índice de exposição gama interno e externo) e avaliando segundo normas internacionais a viabilidade de aplicação para estas rochas.
- Elaborar um banco de dados com informações radiométricas sobre as rochas do estado do Espírito Santo, hoje não existente.
- Estabelecer um comparativo entre valores obtidos para outras localidades no Brasil e no mundo.
- Determinar a taxa de exalação emanação de radônio para estas amostras, estimando assim a dose devida a inalação do radônio.
- Desenvolver, avaliar, intercomparar e aplicar o Durolon[®] em conjunto com outros detectores já bem estabelecidos, obtendo assim um novo detector de baixo custo e bom desempenho.

1.4.1 Originalidade

O presente trabalho contempla a avaliação de amostras das principais lavras em atividade ao longo de toda a cadeia montanhosa do estado Espírito Santo como uma contribuição original do ponto de vista de seu aprofundamento, contribuição social e ineditismo se considerando que tal avaliação é negligenciada frente a avaliações como, por exemplo, a classificação petrográfica das rochas.

Considera-se ainda que índices radiométricos tais como equivalente em rádio, índices de exposição alfa e gama, exposição interna e externa à radiação gama e taxa de exalação não foram determinados anteriormente para estes materiais, servirão como base de dados de consulta para possíveis trabalhos posteriores bem como referência ao comércio e à exportação destes produtos pelo Estado do Espírito Santo.

É possível ressaltar ainda a caracterização e aplicação de um plástico comercial nacional como detector de radiação alfa em condições ambientais medindo a exalação do radônio em câmara para o conjunto de amostras do Espírito Santo mostrando a relação concentração de atividade e exalação para estas amostras.

Por fim, este trabalho apresenta ainda um conjunto de novas metodologias de avaliação combinadas a técnicas já bem estabelecidas, ampliando assim o arcabouço analítico e instrumental para futuras análises similares.

2. METODOLOGIA E DESENVOLVIMENTO

2.1 Amostragens

A extração de rochas ornamentais no Espírito Santo é constituída do beneficiamento de granitos e mármore. As amostras foram selecionadas considerando a maior abrangência possível nas lavras ao longo da Serra Capixaba, cujos pontos de extração e coletas estão enumerados na Tab.1 e localizados na FIG.5.

TABELA 1: Localização das amostras de mármore e granito do Espírito Santo

ID	Município de Localização	Nome Comercial
Granitos		
01	Ecoporanga	Arabesco Claro
02	Ecoporanga	Santa Helena
03	Ecoporanga	Santa Cecília
04	Castelo	Cinza Corumbá
05	Baixo Guandú	Verde Ubatuba
06	Mimoso do Sul	Cinza Andorinha
07	Barra de São Francisco	Amarelo Icaraí
08	Colatina	Preto São Gabriel
09	Ecoporanga	Arebesco Marocco
10	Águia Branca	Amarelo Ornamental
11	Ecoporanga	Giallo Marocco
12	Águia Branca	Branco Dallas
13	São Domingos do Norte	Branco Siena
14	Barra de São Francisco	Fortaleza Quartzito
15	Venda Nova do Imigrante	Cinza Ocre
16	Pancas	Branco Vitória
17	Barra de São Francisco	Branco Dallas
18	Afonso Claudio	Iberê Crema Bordeaux
19	Afonso Claudio	Iberê Mombasa
20	Afonso Claudio	Iberê Ballagio
21	Afonso Claudio	Iberê Prado
22	Afonso Claudio	Iberê Vitara
23	Barra de São Francisco	New Venatian gold
24	Nova Venécia	Branco Primata
Mármore		
25	Cachoeiro do Itapemirim	Cintilante
26	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Extra
27	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Rajado
28	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Azulado
29	Castelo	São Cristovão
30	Itáoca	Pinta Verde
31	Itáoca	Branco Carrarina

Nota: Todas as amostras foram cedidas gentilmente pelas empresas beneficiadoras.

FIGURA 5: Localização das lavras de extração. IBGE (2015)

Para cada localidade selecionada, foram observadas as lavras de extração em atividade sendo que, as empresas responsáveis pelas lavras, foram contatadas e cederam gentilmente amostras cortadas e polidas, utilizadas como mostroário para venda e, confirmando a localização de extração previamente estudada. Cada amostra cedida varia sua massa de 0,5 kg a 1,5 kg e contemplam as regiões norte, central e sul do Estado do Espírito Santo.

2.1.1 Amostras de Mármore

Mármore é uma rocha metamórfica³ oriunda do calcário submetido a elevadas temperaturas e pressão encontrado em regiões de formação vulcânica com rocha matriz calcária. Na FIG.6 é possível ver algumas amostras de mármore analisadas e o mosaico completo pode ser visto no APÊNDICE A.

FIGURA 6: Mosaico de amostras comerciais de mármore do Estado do Espírito Santo.

A composição geral do mármore é responsável por sua coloração e dureza que em geral é formada por calcita (FIG.7A) (CaCO_3 : CaO 56% e 44% CO_2) usualmente de cor branca podendo ocorrer em tons vermelhos, verdes, azuis, amarelados sempre com aspecto opaco e dolomita (FIG.7B) ($\text{CaMg}[\text{CO}_3]_2$: CaO 30,4%, MgO 21,7%, CO_2 47,7%) usualmente cor de rósea ou incolor, branco, ocorrendo também em tons cinzas, verdes e preto e contribuem com o aspecto cristalino da rocha (MACHADO *et al*, 2015) .

FIGURA 7: Componentes do mármore: A) Calcita e B) Dolomita.

³ Denomina-se metamorfismo o processo pelo qual as rochas sofrem transformações físico-químicas por consequência da exposição a elevadas condições de temperatura e pressão que, em geral, ocorrem no interior da terra.

Em proporções menores também compõem os mármore quartzos, piritas, anfibólitos, diopsídeos e outros. A distribuição destas são responsáveis por fatores como dureza, porosidade, coloração e brilho, sendo uma rocha de fácil polimento e corte com substancial valor comercial devida suas características e beleza.

As amostras utilizadas neste trabalho são oriundas das lavras de Cachoeiro do Itapemirim, Castelo (FIG.8) e Itaóca localizados na região Sul do Espírito Santo.

FIGURA 8: Imagens aéreas de lavras de extração de mármore na região de Castelo. Foto cortesia POLITA.

2.1.2 Amostras de Granitos

Rochas mais comuns e abundantes na crosta terrestre, é uma rocha ígnea⁴ também denominada magmática ou eruptiva, tem composição pluriminerálica⁵ formada com ou sem cristalização em dependência do seu processo de resfriamento e localização sendo classificadas como intrusivas ou extrusivas (WERNICK, 2004, FERREIRA, 2013).

As rochas intrusivas ou plutônicas (localizadas abaixo da superfície terrestre) extraídas de lavras subterrâneas são consolidadas a partir do magma resfriado lentamente originando estruturas cristalinas em sua formação. As rochas extrusivas por sua vez são consolidadas por um resfriamento rápido do magma na superfície terrestre gerando padrões amorfos em sua estrutura de formação.

⁴ Termo oriundo do latim [*Ignis*: fogo] denomina rochas consolidadas a partir da solidificação do magma derretido ou parcialmente derretido.

⁵ Formado por grande quantidade de minerais diferentes.

Devido ao seu caráter pluriminerálico, os granitos com coloração escura em geral são ricos em minerais como o magnésio e ferro (originando o nome máficas) enquanto as de cor clara tem predominância de silício e alumínio. A FIG.9 apresenta um mosaico com alguns granitos analisados (mosaico completo pode ser visto no APÊNDICE A) e na FIG.10 uma lavra típica de extração de granito.

FIGURA 9: Mosaico de amostras de granitos. (Imagem: Acervo pessoal)

FIGURA 10: Lavra de extração de granito no noroeste do Estado do Espírito Santo. (Foto: GAZETA DO NORTE, 2015)

2.2 Espectrometria Gama

A FIG.11 representa o esquema de detecção e aquisição de dados para o espectrômetro gama com detector de alta resolução hiper puro de germânio (HPGe).

FIGURA 11: Esquema de montagem de um dos espectrômetros gama utilizado neste trabalho.

A radiação gama emitida pela fonte interage com o cristal do detector gerando um pulso elétrico que será amplificado, analisado e posteriormente armazenado. A altura do pulso elétrico gerado terá dependência direta com a energia do fóton gama que interagiu com o cristal e este será relacionado a um canal do analisador multicanal.

A localização do canal-pico é determinada a partir da altura do centroide do pico fazendo com que a relação entre o canal-pico e a energia do fóton gama sejam relacionados a partir de uma curva de calibração do detector. A curva de calibração canal-energia tem dependência com o ajuste do ganho do amplificador de sinal. A área total do pico será diretamente proporcional à atividade da amostra considerando que há correção por eficiência absoluta do sistema de contagem (KNOLL, 2010).

O cálculo da área total do pico para cada radionuclídeo é determinada a partir de um software que, por ajuste de uma curva gaussiana sobre a área de cada fotopico e, retirando desta a contagem referente à radiação natural de fundo (*background*) previamente determinada, fornece a área líquida para o fotopico analisado.

A área líquida do fotopico e a atividade do radionuclídeo terá sua relação estabelecida a partir da curva de eficiência. Em casos em que a amostra analisada contenha radionuclídeos de meia vida curta será necessário uma correção considerando o decaimento radioativo em função do tempo. No presente trabalho, todos os radionuclídeos apresentam meia vida relativamente longa, tal correção não se fez necessária considerando que a atividade destes pode ser considerada constante em relação ao tempo de medida.

2.2.1 Pré tratamento para a espectrometria gama HPGe

As amostras de mármore e granito por natureza são heterogêneas e, para que esta característica possa ser desprezível na detecção, estas são inicialmente britadas em pilão de aço carbono (FIG.12A) com posterior homogeneização por moagem em um moinho de anel (FIG.12D) até a granulação de 270 mesh (partículas da ordem de 53 μm) mais que suficiente para garantir a característica necessária. Para que tal granulação seja atingida, o moinho (FIG.12E) foi programado para um tempo de moagem de 60s.

FIGURA 12: Processo de moagem. A) Pilão pré-processamento, B) conjunto panela, tampa, êmbolo e anel, C) acondicionamento amostra pré-processada D) amostra moída e homogeneizada, E) moinho. (Imagem: Acervo pessoal).

Após moagem, as amostras foram acondicionadas em frascos padrão de 100 mL de polietileno de alta densidade (HDPE) com batoque de 52,5 mm e tampa rosqueada

(FIG.13) que não apresenta porosidade ao gás radônio⁶, fortemente selados, e mantidos em suspensão por aproximadamente 4 semanas (30 dias) para que o equilíbrio secular das séries do ^{238}U e ^{232}Th fossem alcançados, garantindo assim a equivalência entre o radionuclídeo “pai” e os filhos gerados a partir do decaimento radioativo ocorrido (EVANS, 1972; BITTELI, 2006).

Todas as massas das amostras foram mensuradas em uma balança semi-analítica GEHAKA BK3000 (3% de erro na medida), acondicionadas em frascos padrão e posteriormente seladas com fita de PVC.

FIGURA 13: Conjunto frasco amostrador F-100HDPE, e amostra selada e pronta para ser analisada. (Imagem: Acervo pessoal).

2.2.2 Espectrômetro gama e contagem das amostras.

Todas as amostras foram analisadas por espectrometria gama de alta resolução, com detectores coaxial de germânio hiper puro (HPGe) com 15% (atestada pelo fabricante 15% detector G e 17,7% detector P)⁷ de eficiência relativa com eletrônica convencional e um analisador multicanal ORTEC EG&G Spectrum Master 4k. A resolução medida para a transição de 1332.5 keV do ^{60}Co foi de 2,9 keV.

⁶ Esta condição pode ser verificada experimentalmente observando a atividade gama medida dos filhos do ^{222}Rn (FIG.1) que devem possuir, a menos de um erro estatístico, a mesma atividade gama determinada. Quando tal condição não é satisfeita rejeita-se a contagem da amostra e refaz-se a selagem.

⁷ P e G são referências internas de controle do laboratório em relação ao detector utilizado.

O detector HPGe e a amostra analisada foram acondicionados dentro de uma blindagem de chumbo com 10 cm de espessura e contados por 160.000 s para as amostras de granitos e 300.000 s para as amostras de mármore. Todos os espectros resultantes foram analisados com o Software WinnerGamma®. (ORTEC, 2004). A FIG.14 mostra a montagem do detector gama utilizado no presente trabalho e a FIG.15 mostra a eletrônica associada ao detector.

FIGURA 14: A) Detector gama. B) Parte inferior da blindagem mostrando o dewar de resfriamento (DWR-30) e assinalado parte do detector. C) Vista interna da blindagem convencional de chumbo. D) frasco amostrador F100 sobre detector HPGe. (Imagem: Acervo pessoal)

FIGURA 15: Eletrônica associada. A) Da direita pra esquerda, são vistas a fonte de alimentação ORTEC 659 e o amplificador ORTEC EG&G 672. B) Ao centro é visto o analisador multicanal ORTEC EG&G 919 Spectrum Master. (Imagem: Acervo pessoal).

A eficiência do detector foi determinada previamente a partir de uma solução padrão multi-elemento para a mesma geometria do amostrador. A radiação de fundo foi determinada pela medida de uma amostra de água ultra pura na mesma geometria das amostras.

2.3 Fator Percentual de Correção por Atenuação Gama.

Durante o processo de emissão radioativa pela amostra, é possível que haja interação da emissão com a própria amostra devido a fatores como composição, densidade aparente, dimensões, entre outros, impedindo que, uma parcela da radiação emitida por esta amostra, interaja com o sistema de detecção, tendo por consequência a perda da intensidade do sinal detectado. Tal fenômeno é um efeito de matriz analítica denominado atenuação por auto absorção.

Particularmente, a interação dos fótons gama com alguns matérias componentes da amostra podem promover absorção da energia e espalhamento principalmente devido ao Efeito Fotoelétrico, Efeito Compton e Produção e aniquilação de pares sendo estes acentuados em dependência com a energia do fóton gama e número atômico do material alvo na amostra. (AQUINO *et al.*, 2013).

Fisicamente, em dependência com a energia, observa-se que para a região de predominância do efeito fotoelétrico e espalhamento Compton (alguns keV até 600 keV) este fenômeno se torna mais acentuado devido ao favorecimento destes efeitos por elementos de baixo número atômico ($Z \leq 20$) comuns em rochas e solos. Como efeito, observa-se que a atenuação na região de menor energia do espectro gama, a atenuação é mais intensa em relação à região de maior energia conforme pode ser observado na FIG.16 que mostra uma curva característica de atenuação considerando energias entre 200 keV a 1600 keV:

FIGURA 16: Curva característica de exemplo do percentual de atenuação em relação energia gama.

Outra consideração a ser feita é sobre o processo de calibração do detector que utiliza uma fonte padrão multi elemento calibrada, na mesma geometria das amostras, diluída em água hiper pura com densidade e composição consideravelmente distintas e menores em relação a das amostras, ocasionando uma redução no valor da contagem líquida da amostra sendo então necessária a correção com parte do efeito de matriz (VENTURINI e NISTI, 1997; AQUINO, 2010; BARROS e PECEQUILO, 2014).

Todo efeito observado de matriz analítica, que resulta na atenuação total, mostra que, para cada amostra, existe uma atenuação específica que deverá ser corrigida a partir de uma função de correção que considere um percentual de atenuação sofrido para cada região do espectro característico, relacionando a energia afetada pelo efeito de matriz com a correção percentual necessária para que este forneça o valor adequado em relação à energia. O percentual de atenuação ζ observado pode ser determinado pela equação (1);

$$\zeta = \frac{1}{2} \left(\frac{C_P - C_A}{C_A} \right) \quad (1)$$

Onde C_P corresponde à área líquida de contagem para o foto pico gama do padrão na mesma geometria da amostra e C_A corresponde à área líquida da contagem para o foto pico gama atenuado da amostra. A incerteza associada $\sigma\zeta$ para o percentual de correção pode ser determinada pela equação (2)

$$\sigma\zeta = \zeta \cdot \sqrt{\frac{\sigma C_P^2}{(C_P - C_A)^2} + \left(\frac{\sigma C_P}{C_P} \right)^2} \quad (2)$$

Onde σC_P e σC_A correspondem aos erros na contagem para as áreas líquidas em cada foto pico do padrão e amostra, respectivamente.

Para a obtenção dos fatores percentuais de correção foram utilizadas as energias correspondentes ao foto pico para as transições gama das fontes calibradas de ^{60}Co , ^{152}Eu e ^{137}Cs abrangendo as energias do espectro gama das amostras analisadas, conforme a TAB.2.

TABELA 2: Transições gama selecionadas para a determinação da curva de atenuação.

Fonte padrão IAEA	Energia E_γ	Intensidade γ
	[keV]	[%]
^{152}Eu	121,781 (3)	28,70
	244,956 (8)	7,58
	344,278 (12)	26,60
^{137}Cs	661,657 (3)	85,10
^{60}Co	1173,24 (3)	99,85
	1332,5 (4)	99,98
^{152}Eu	1457,63 (11)	0,50

* Valores de referência da base de dados NNDC (1996-2003).

** Valores entre parênteses correspondem à incerteza.

O fator de correção percentual, para cada transição gama das amostras, pode ser determinado por uma função ajustada a partir da interpolação dos fatores de correção para as energias de cada transição gama selecionada das fontes padrão conforme a equação (3):

$$\zeta(E_\gamma) = C_1 \cdot \ln(E_\gamma) + C_2 \quad (3)$$

Onde E_γ corresponde à energia, em keV, da transição a ser corrigida e C_1 e C_2 são os coeficientes ajustados pela curva cujos valores variam em relação à composição da amostra. Com o fator de correção, a atividade corrigida A_C é obtida a partir do fator de acréscimo percentual conforme a equação (4);

$$A_C = A_T \left(1 + \frac{\zeta(E_\gamma)}{100} \right) \quad (4)$$

Onde A_T corresponde à concentração de atividade atenuada.

A incerteza associada à atividade corrigida σA_C pode ser determinada conforme equação (5);

$$\sigma A_C = A_C \cdot \sqrt{\left(\frac{\sigma A_T}{A_T} \right)^2 + \left(\frac{\sigma \zeta(E_\gamma)}{\zeta(E_\gamma)} \right)^2} \quad (5)$$

2.3.1 Arranjo experimental para atenuação gama.

FIGURA 17: Arranjo experimental para atenuação gama.

O arranjo experimental composto por fonte, colimador e amostra (FIG.17), foi disposto sobre o detector dentro da blindagem de chumbo (FIG.14A). As amostras foram irradiadas com as fontes selecionadas e individualmente por um tempo de 1000s suficientes para a obtenção do espectro. A FIG.18 mostra a disposição experimental no detector.

FIGURA 18: Arranjo experimental. A) Conjunto fonte, colimador. B) Suporte de lucite para o colimador e fonte. C) Arranjo disposto na blindagem. D) Detalhe da amostra

2.4 Cálculo da Concentração de Atividade do Radionuclídeo e Índices Dosimétricos

2.4.1 Cálculo da concentração de atividade a partir da emissão gama

A concentração de atividade atenuada A_T , em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, de um dado radionuclídeo é dada transição gama, pelo software WinnerGamma conforme equação (6) (ORTEC, 2004).

$$A_T = \frac{C}{\varepsilon_\gamma \cdot I_\gamma \cdot t_u \cdot m} \quad (6)$$

Sendo que C corresponde à área líquida do pico de absorção total, ε_γ é a eficiência de detecção para a transição gama considerada, I_γ é a probabilidade de transição absoluta por decaimento gama para a energia de interesse, t_u intervalo de tempo útil⁸ de medida em segundos e m massa da amostra em kg.

Devido à meia vida longa dos radionuclídeos estudados (FIG.1), não é feita a correção por decaimento radioativo da amostra durante a medida. A incerteza associada σ_A é determinada a partir da incerteza expandida, conforme a equação (7);

$$\sigma A = A \cdot \sqrt{\left[\frac{\sigma C}{C}\right]^2 + \left[\frac{\sigma \varepsilon_\gamma}{\varepsilon_\gamma}\right]^2 + \left[\frac{\sigma I_\gamma}{I_\gamma}\right]^2 + \left[\frac{\sigma t_u}{t_u}\right]^2 + \left[\frac{\sigma m}{m}\right]^2} \quad (7)$$

Onde cada σx corresponde respectivamente às incertezas associadas para cada termo especificado na equação (6).

Com as expressões (6) e (7) o software WinnerGamma 6 calcula as concentrações de atividades e incerteza associada para cada radionuclídeo determinado gerando um arquivo de informações que posteriormente é tratado em uma planilha onde serão corrigidos os efeitos de matriz devido a auto atenuação (item 2.3) determinando-se então cada valor concentração de atividade corrigida para cada transição gama avaliada.

⁸ Termo original do inglês “Live time”.

Para casos em que um determinado radionuclídeo possui mais de uma transição gama, o valor da atividade para o radionuclídeo foi determinado a partir da média ponderada das atividades calculadas para cada uma das transições consideradas, ponderada pelo inverso da variância desta atividade, segundo a equação (8):

$$\bar{A} = \frac{\sum_i^N \frac{A_i}{\sigma_i^2}}{\sum_i^N \frac{1}{\sigma_i^2}} \quad (8)$$

Sendo $\bar{A}$ a concentração média ponderada para a atividade do radionuclídeo, em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, A_i concentração de atividade em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para a transição gama i detectável, σ_i a incerteza associada à concentração de atividade em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. A incerteza associada à atividade média ponderada para todas as N -ésimas transições é determinada conforme a equação (9):

$$\sigma_{\bar{A}} = \frac{1}{\sqrt{\sum_i^N \frac{1}{\sigma_i^2}}} \quad (9)$$

Considerando o equilíbrio radioativo (EVANS, 1972), a concentração de atividade de ^{232}Th foi determinada a partir da concentração média ponderada dos radionuclídeos ^{228}Ac , ^{212}Pb e ^{212}Bi e a concentração de ^{226}Ra foi determinada a partir da concentração média ponderada dos radionuclídeos ^{214}Pb e ^{214}Bi . A concentração de ^{40}K é determinada diretamente a partir da área da transição gama única. Para cada radionuclídeo foram consideradas as transições gama de maior intensidade conforme exposto na TAB.3.

TABELA 3: Transições gama utilizadas para a determinação da concentração de radionuclídeos.

Radionuclídeo	Radionuclídeos utilizados para a determinação da atividade.	Transição gama Energia (keV)	Transição gama Intensidade (%)
^{226}Ra ("Pai") (Série ^{238}U)	^{214}Pb ("Filho")	295,21	18,7
		351,92	35,8
	^{214}Bi ("Filho")	609,32	45
^{232}Th ("Pai") (Série ^{232}Th)	^{212}Pb ("Filho")	238,63	43,5
		300,09	3,25
	^{212}Bi ("Filho")	727,33	6,6
		911,07	27,8
^{40}K	^{40}K	968,9	16,7
		1460,83	10,7

FIG.1 e (NNDC, 2004)

Para cada amostra foi tomado um conjunto de três amostragens ($N=3$) sendo o valor final da concentração de atividade considerada A_f (^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K) obtido a partir da média aritmética simples e o desvio padrão na média conforme as equações (10) e (11):

$$A_f = \frac{\sum_{i=1}^N \bar{A}_i}{N} \quad (10)$$

$$\sigma A_f = \frac{\sqrt{\sum_{i=1}^3 \bar{A}_i (\bar{A}_i - A_f)^2}}{(N-1)} \quad (11)$$

A atividade mínima detectável ou AMD corresponde ao menor valor de concentração de atividade que a amostra deve conter para que uma medida permita que a detecção de um determinado radionuclídeo seja possível a partir dos métodos analíticos adotados. O valor da quantidade AMD para um determinado radionuclídeo é fornecido pela equação (12) pelo software WinnerGamma(ORTEC, 2004):

$$AMD_I = \frac{4,66 \cdot \sqrt{B_I}}{\varepsilon_\gamma \cdot I_\gamma \cdot t_u} \quad (12)$$

Sendo que AMD_I é a concentração de atividade mínima detectável para a atividade do radionuclídeo, em $\text{Bq} \cdot \text{kg}^{-1}$, B_I área das contagens correspondente a radiação de fundo na região da transição gama i , ε_γ é a eficiência de detecção para a transição gama considerada, I_γ a probabilidade de emissão do fóton gama por decaimento e t_u o intervalo de tempo útil de medida em segundos.

2.4.2 Equivalente em rádio

Para representar as atividades de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K por uma grandeza única que leva em consideração o risco por radiação, foi introduzido um índice comum, em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, denominado equivalente em rádio (BERETKA e MATHEW, 1985). Este índice é um guia útil na avaliação das normas de segurança de proteção radiológica para os indivíduos do público que residem nas construções (OECD, 1979).

A atividade equivalente em rádio Ra_{eq} é a soma ponderada das concentrações dos três radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K que supõe que $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{226}Ra , $259 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{232}Th e $4810 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de ^{40}K produzam a mesma taxa de dose de radiação gama. O equivalente em rádio é determinado pela equação (13) (STRANDEN, 1976; MEDHAT, 2009);

$$Ra_{eq} = 370 \cdot \left(\frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \right) \quad (13)$$

Onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K representam as concentrações de atividades em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para o ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , respectivamente. É recomendado para o uso seguro como material de construção que o valor do equivalente em rádio não exceda o limite de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ (OECD, 1979; BERETKA e MATHEW, 1985). Outros valores de referência estão indicados na TAB.4.

TABELA 4: Limites para o equivalente em rádio recomendados para materiais de construção.

Classe	Equivalente em Rádio	
	[$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$]	Aplicação possível
1	< 370	Residencial
2	370-740	Industrial
3	740-2220	Estradas e pontes
4	2220-3700	Fundação ou não residencial
5	>3700	Sem aplicação possível

(SAAS, 1979)

2.4.3 Índice de risco a exposição gama externo e interno

Segundo a Comissão Internacional de Proteção Radiológica⁹ ICRP (1977), o limite de dose para materiais de construção é de $1,5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$. Para avaliar por um índice que limite a este valor, KRIEGER (1981) propõe um modelo conservativo baseado em um quarto com paredes infinitamente finas isento de janelas e portas como critério para formular o índice de risco a exposição gama externo H_{ex} , definido pela equação (14) (HASSAN *et al*, 2010);

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (14)$$

Onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K correspondem às concentrações de atividades em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para o ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K respectivamente. O resultado da equação remete a um valor adimensional que deve ser menor ou igual a 1 que equivale a dose aproximada de $1,5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$.

É definido também um índice de risco para exposição gama interna H_{in} , que considera o radônio e seus produtos de decaimento de meia vida curta e o risco da inalação destes por acúmulo nos ambientes. O índice H_{in} é calculado a pela equação (15) (UNSCEAR, 1988);

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (15)$$

Onde A_{Ra} , A_{Th} e A_K correspondem às concentrações de atividades em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para o ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K respectivamente. Para a aplicação segura este índice deve ser menor ou igual a 1.

⁹ Do inglês: *International Commission on Radiological Protection*

2.4.4 Estimativa de dose absorvida no ar

A estimativa de taxa de dose absorvida D em $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ é definida pela dose absorvida no ar a 1 m do solo considerando a exposição gama emitida pelos radionuclídeos naturais A_{Ra} , A_{Th} e A_K determinada conforme a equação (16) (SOWMYA *et al*, 2010)

$$D = 0,462 A_{Ra} + 0,604 A_{Th} + 0,0417 A_K \quad (16)$$

A_{Ra} , A_{Th} e A_K na equação correspondem às concentrações de atividades em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para o ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K respectivamente.

A estimativa de dose efetiva anual considerando o tempo diário em horas de exposição à radioatividade destes materiais E em $\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ é determinada pela equação (17);

$$E = D[\text{nGy} \cdot \text{h}^{-1}] \times \text{Exp}[\text{h} \cdot \text{a}^{-1}] \times 0,7[\text{SvGy}^{-1}] \times 10^{-6} \quad (17)$$

Na equação D é a dose estimada em $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$, Exp é o número de horas de exposição por ano equivalendo a $24\text{h} \times \text{Dias} \times \text{Ft}$, Ft a fração de tempo do dia relacionado com a atividade realizada e 0,7 é um fator de conversão $\text{Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}$ para a dose absorvida no ar.

O valor anual recomendado para a dose estimada não deve exceder $1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$. Expostos na TAB.5 estão os fatores determinados para cada modelo de estimativa.

TABELA 5: Tempo anual para estimativa de dose, considerando a atividade realizada durante o dia.

Modelo de atividade	Tempo de atividade anual Ft [%]	Dias	Exposição [h.a ⁻¹]
Tempo dentro de casa *	80%	365,25	7012,8
Tempo fora de casa *	20%	365,25	1753,2

* (UNSCEAR, 2000)

2.4.5 Índice de exposição alfa I_α

Um importante valor a ser considerado, o índice de exposição alfa proposto por Krieger (1981) e Stoulos *et al.*, (2003), propõe um valor associado a exposição do radônio exalado em materiais de construção e pelo qual a rocha ornamental pode ser classificada. O índice de exposição alfa considera o limite proposto pelas Normas Nórdicas (NORDIC, 2000), Comissão Europeia¹⁰ (EC, 1990) e (ICRP, 1994) que em acordo sugerem o limite máximo de 200 Bq·kg⁻¹ para a concentração de ²²⁶Ra em materiais de construção, podendo ser determinado pela equação (18);

$$I_\alpha = \frac{A_{Ra}}{200} \leq 1 \quad (18)$$

O índice proposto considera que exceder o limite de 200 Bq·kg⁻¹ poderá causar no interior das residências uma concentração de radônio superior a 200 Bq·m³ inviabilizando a aplicação como material de construção. Por outro lado, se a concentração de atividade mostrar valores até 100 Bq·kg⁻¹ torna-se improvável que a exalação de radônio em materiais de construção possa vir a contribuir com valores de radônio no ar superiores a 200 Bq·m³ (RAVISANKAR *et al.*, 2012).

2.4.6 Índice de exposição gama I_γ

Similar ao índice de exposição alfa, o índice de concentração de atividade gama proposto pela Comissão Europeia (EC, 1999), considera a exposição gama causada pelos principais radionuclídeos naturais presentes em materiais de construção determinada pela equação (19);

$$I_\gamma = \frac{A_{Ra}}{300} + \frac{A_{Th}}{200} + \frac{A_K}{3000} \quad (19)$$

A EC recomenda que, para que materiais de construção estejam isentos de controle, o valor calculado deste índice não deva ultrapassar 0,3 para uso interno de construção. Entre 0,3 e 1 mSv·a⁻¹ é estabelecido controle para esta aplicação. De

¹⁰ Do inglês: *European Commission*.

acordo com este índice, a avaliação da aplicabilidade pode ser feita conforme a TAB.6:

TABELA 6: Valores sugeridos para avaliação do limite de índice gama para materiais de construção.

Material considerado	Critério de dose por material para I_γ	
	Isento	Controle
	$0,3 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$	$1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$
Tijolo, e materiais a granel.	$\leq 0,5$	$\leq 1^*$
Material superficial, telhas, lajes, placas	≤ 2	≤ 6

* Limite máximo adotado para avaliação no presente trabalho (EC, 1999).

2.5 Determinação do Radônio

2.5.1 Preparo e revelação das amostras para detectores SSNTD

Amostras de cerca de meio kilograma de granito ou mármore cortados e polidos conforme beneficiados para venda como pedras ornamentais foram acondicionadas em recipiente estanque de polietileno de alta densidade com volume de 11,5 L selados e mantidos em suspensão por 60 dias, tempo suficiente para acumulação do gás radônio segundo a metodologia da “câmara selada”. (FERREIRA *et al*, 2011; FERREIRA, 2013)

Para a detecção, foram utilizados simultaneamente dois detectores para cada câmara: O plástico comercial CR-39¹¹-PADC® (polialil diglicol carbonato) com dimensões de 7x5 mm² e Durolon®PC (Bisphenol-A), neste trabalho denominado DR-1, cortado manualmente em dimensões de 7x5 mm². Ambos os detectores foram acondicionados simultaneamente em monitores do tipo NRPB/SSI-H (FIG.19A) e acondicionados em câmara de acumulação (FIG.19B) por um período de tempo de 60 dias.

FIGURA 19: Arranjo experimental para detecção do ^{222}Rn . A) Conjunto de detectores em dosímetro NRPB/SSI-H, B) câmara de acumulação e amostra, ao lado tampa e dosímetro NRPB/SSI fixado na tampa. (Imagem: Acervo pessoal).

¹¹ CR-39 é sigla da marca Columbia Resin 39° teste que hoje é marca registrada da Pittsburgh Plate Glass Company.

Os detectores irradiados foram revelados em diferentes tempos, conforme o protocolo específico: (AQUINO *et.al*, 2014).

Para o DR-1, foi aplicada uma solução padrão PEW-40 (40% de álcool anidro, 15% de KOH e 45% de água ultrapura) sendo revelados em banho-maria (FIG.20) a 70°C por duas horas com posterior lavagem em solução de HNO₃ 15% e água ultrapura finalizando o processo de revelação.

Para o CR-39, o protocolo aplicado considerou uma solução de 30% de KOH e 70% de água ultrapura com revelação em banho-maria (FIG.20) a 80°C por 5 horas e meia. Após o processo, os detectores de CR-39 foram lavados em água deionizada, finalizando o processo de revelação.

FIGURA 20: À esquerda banho-maria utilizado para revelação dos detectores e a direita microscópio digital utilizado para a leitura dos detectores. (Imagem: Acervo pessoal)

2.5.2 Cálculo da concentração de atividade a partir dos detectores SSNTD

A densidade de traços por centímetro quadrado ρ em ambos os detectores foi obtida a partir da contagem manual em um microscópio digital convencional (FIG.20) com magnificação de 400X e eletrônica associada, considerando como área de leitura a região central de cada detector (área total leitura de 8 mm² do detector) e desprezando a região das bordas, conforme a equação (20):

$$\rho = \frac{Tr-BG}{S} = \frac{Tr-BG}{6,7 \times 10^{-2}} \quad (20)$$

Onde, Tr corresponde à leitura a partir do microscópio, S área de leitura determinada, e BG a contagem de traços do detector não irradiado e revelado, correspondendo à radiação de fundo previamente registrada. O desvio na contagem considerando o conjunto de dez medidas para cada detector foi determinado pela distribuição de Poisson.

A partir da densidade de traços determinada para o detector, a concentração de atividade A_α em Bq·m⁻³ devida à irradiação alfa é determinada a partir da equação (21):

$$A_\alpha = \frac{\rho}{F \cdot t_{ef}} \quad (21)$$

Onde ρ corresponde a densidade de traços por cm², F é o fator de sensibilidade correspondente ao detector escolhido e t_{ef} corresponde ao tempo efetivo de integração decorrido, determinado pela equação (22);

$$t_{ef} = t - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{-\lambda t}) \quad (22)$$

Sendo que t corresponde ao tempo real decorrido em horas de irradiação em câmara, e λ é a constante de decaimento radioativo para o radionuclídeo considerado (neste caso, ²²²Rn).

Os valores determinados segundo ICRP (2014) não deverão exceder a 148 Bq·m⁻³ [4pCi·L⁻¹] para aplicação residencial. Segundo a Comissão Canadense de Segurança Nuclear - CNSC¹² (2000) o material é considerado livre de controle se estiver até

¹² Do inglês: *Canadian Nuclear Safety Commission*.

200 Bq·m⁻³. Caso esteja entre 200 e 600 Bq·m⁻³ recomenda-se correção em até dois anos e se acima de 600 Bq·m⁻³ recomenda correção em até um ano.

2.5.3 Taxa de exalação do radônio

A taxa de exalação superficial E_{sup} em Bq·m⁻²·h⁻¹ na câmara de acumulação selada (FIG.18B) foi determinada a partir da equação (22) (MAHUR *et al*, 2008):

$$E_{sup} = \frac{A_{\alpha} \cdot \lambda}{S} \cdot \frac{1}{\left[t - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{\lambda t}) \right]} \quad (22)$$

Onde A_{α} é a concentração de atividade em Bq·m⁻³·h⁻¹, λ é a constante de decaimento do radônio em h⁻¹, S a área de exalação superficial da amostra m² e t o tempo de exposição em horas.

De forma análoga, a taxa de exalação em relação à massa da amostra pode ser obtida pela equação (23)

$$E_m = \frac{A_{\alpha} \cdot V \cdot \lambda}{M} \cdot \frac{1}{\left[t - \frac{1}{\lambda} (1 - e^{\lambda t}) \right]} \quad (23)$$

Onde A_{α} é a concentração de atividade em Bq·m⁻³·h⁻¹, λ é a constante de decaimento do radônio em h⁻¹, M a massa e da amostra em kg e t o tempo de exposição em horas.

3. CARACTERIZAÇÃO DE UM PLÁSTICO COMERCIAL COMO DETECTOR SSNDT

3.1 Caracterização dos Traços Válidos no Processo de Contagem

Os detectores sólidos de traços nucleares utilizados na detecção do radônio baseiam seu funcionamento na propriedade das partículas carregadas pesadas interagirem com o plástico deixando um traço latente (cilindro sub microscópico de moléculas danificadas com diâmetro da ordem de 50 a 100 Angstroms) que se torna visível sob um microscópio óptico, após ataque químico específico (FLEISCHER, 1975).

O traço formado após o ataque químico assemelha-se a um cone (FIG.21), como a observação sob o microscópio óptico é feita sobre a superfície do plástico, a aparência do traço revelado assemelha-se a um círculo ou uma elipse, dependendo do ângulo de incidência da partícula conforme pode ser visto na FIG.22:

FIGURA 21: Imagem de traços após ataque químico em um Durolon® obtidas por microscopia de força atômica. (Imagem: Acervo pessoal).

FIGURA 22: Imagem do Durolon® após ataque químico, obtidas em um microscópio digital convencional. (Imagem: Acervo pessoal)

A densidade dos traços, ou seja, a quantidade de traços por área ativa do detector, (Eq.19) será proporcional à atividade do α -emissor e deverá ser obtida diretamente a partir da contagem de traços por área. Conhecendo o radionuclídeo emissor e a energia associada à partícula α carregada (^{222}Rn : $\epsilon=5489,52$ keV para 99,92% das partículas incidentes), a contagem adequada deve considerar os traços relacionados com a energia desta partícula o qual ocasionará um determinado diâmetro de traço. Se a avaliação do diâmetro do traço que deverá ser contado for inadequada, resultara numa interpretação inconsistente para a concentração de atividade (Eq.21) ou determinação do fator de calibração e sensibilidade (Item 3.2).

Na caracterização dos traços obtidos no Durolon®, após o ataque químico, ocorrem tanto traços como danos na superfície ativa do detector que podem ser confundidos e contados em conjunto. O dano pode ser oriundo do manuseio no processo de revelação bem como na própria estrutura da superfície do detector e, para diferenciar e caracterizar ambos, irradiou-se amostras de Durolon® com alfas do ^{222}Rn produzidas em uma fonte calibrada PYLON® RN-1025 (Item 3.2) e utilizou-se

microscopia de força atômica AFM¹³ Nanoscope IIIa (FIG.23) em modo *tapping mode*¹⁴ para obter a imagem topográfica da superfície pós ataque em conjunto com o software WSxM®¹⁵ 5.0.6.3 para analisar as imagens obtidas (HORCAS *et al.*, 2007).

FIGURA 23: Imagem Microscópio AFM convencional configurado na modalidade AFM-Tapping Mode. (Imagem: Acervo pessoal).

¹³ AFM do inglês: *Atomic Force Microscopy*

¹⁴ Nesta modalidade de configuração, a ponta de prova do microscópio oscila tocando sutilmente a superfície do plástico a cada ciclo de oscilação com uma força de contato que varia entre 10^{-6} a 10^{-12} N.

¹⁵ Software livre desenvolvido pela empresa Nanotec Eletrônica S.L.

3.2 Irradiação e Dispositivo Irradiador

No processo de irradiação aplicado para determinação do fator de sensibilidade e calibração dos detectores (item 3.3), estes foram expostos simultaneamente, conforme arranjo (FIG.19A) em dosímetro tipo NRPB/SSI-H onde, em um mesmo dosímetro foram dispostos o Durolon[®] e o CR-39, a diferentes concentrações de atividades em dispositivo estanque de volume $1,6546 \times 10^{-2} \text{m}^3$, preenchido com mistura gasosa ar atmosférico e ^{222}Rn proveniente de uma fonte calibrada de ^{226}Ra Pylon[®] modelo RN-1025 (FIG.24) com atividade de 2000 kBq (54 μCi) (PYLON, 1992) transferidos com fluxo constante de $2 \text{L} \cdot \text{minuto}^{-1}$ até o esgotamento por diferença de pressão (-200 mmHg), com temperatura controlada de 22°C e pressão atmosférica de 0,92 atm.

FIGURA 24: Dispositivo estanque irradiador. A) Medidor de fluxo, B) Fonte PYLON-RN1025, C) Cronômetro, D) Bomba de vácuo, E) Câmara estanque de irradiação, F) Medidor de pressão. (Imagem: Acervo pessoal)

FIGURA 25: Diagrama de operação da fonte de irradiação.

O processo de irradiação segue protocolo mostrado na FIG.25:

- 1º Exaustão da fonte:** Inicialmente a atividade da fonte é máxima. Para que a fonte esteja com a atividade próxima a zero, abrem-se as válvulas de entrada e saída da fonte e acopla-se a bomba de exaustão na entrada do medidor de fluxo proporcionando um fluxo constante de ar através da fonte durante um tempo de 1h.
- 2º Crescimento do radônio:** Após a fonte ser exaurida, fecham-se as válvulas de entrada e saída controlando o tempo por um cronômetro.
- 3º Vácuo:** Fixa-se o dosímetro NRPB/SSI-H na tampa da câmara de irradiação e, após acoplamento da bomba de vácuo na saída da válvula de exaustão da câmara, com a válvula de saída da fonte fechada, a pressão no interior da câmara é reduzida a -200 mmHg. Após vácuo, a válvula de exaustão da câmara permanece fechada.
- 4º Irradiação:** Após ser atingida a atividade desejada na fonte, abre-se totalmente a válvula de entrada e gradativamente a válvula de saída de modo que o fluxo de ar atmosférico a uma razão de $2\text{L}\cdot\text{minuto}^{-1}$ possa passar pela fonte e, por diferença de pressão, transportar o radônio acumulado na fonte até a câmara. Manter o fluxo até que a pressão da câmara se iguale a pressão atmosférica.
- 5º Selagem:** Ao término do processo, todas as válvulas são fechadas e o dispositivo fica em suspensão por um tempo de sete dias (próximo a duas meias vidas do radônio 7,64 dias).

Para este modo de operação, a concentração de atividade $A_{222_{Rn}}$ em $Bq \cdot m^{-3}$ dispensada pela fonte pode ser determinada a partir dos parâmetros de irradiação segundo a equação (24);

$$A_{222_{Rn}} = \frac{A_{226_{Ra}} \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_c})}{V_d} \quad (24)$$

Sendo que $A_{226_{Ra}}$ representa a atividade nominal da fonte, t_c o tempo de crescimento após o total esgotamento, $\lambda = 0,0001258 \text{ min}^{-1}$ (NNDC, 2015) e V_d o volume total em m^3 de gás dispensado pela fonte nas câmeras consideradas as condições ambiente. A incerteza no processo pode ser determinada a partir do desvio padrão.

3.3 Fator de Sensibilidade e Calibração a Partir da Sensibilidade Intrínseca Relativa

Em sua tese, PUGLIESI (2008) mostrou, a partir de uma irradiação com um feixe de nêutrons térmicos [reação induzida $^{10}B(n,\alpha)^7Li$], que o Duroton® apresenta características desejáveis para ser candidato a detector SSNTD. Entretanto, para esta finalidade, faz-se necessária a caracterização quanto a aplicabilidade enquanto técnica de detecção em condições ambientais e as condições adequadas de leitura em dosímetro bem como seu fator de calibração e sensibilidade adequado.

Para a determinação do fator de calibração e sensibilidade para o Duroton®, foi desenvolvida a técnica de dupla exposição, que consistem em submeter dois diferentes detectores SSNTD, sendo um deles conhecido e previamente caracterizado, avaliando a diferença percentual relativa na quantidade de traços contada em cada detector. A esta diferença de percepção da emissão alfa por cada tipo de detector denominou-se sensibilidade intrínseca.

Define-se aqui a sensibilidade intrínseca como sendo a capacidade de sensibilização de um plástico a uma determinada fonte emissora de partículas alfas em diferentes faixas de concentração de atividade diferenciando esta da radiação de fundo até a máxima saturação. Esta sensibilidade é, portanto uma característica de cada tipo de detector SSNTD ligada intrinsecamente a suas propriedades físico-químicas.

Partindo do pressuposto de que sendo esta característica inerente a cada tipo de detector SSNTD e que isso influencia diretamente na quantidade de observada traços, é dedutível que ambos os detectores irradiados devam registrar, de diferentes formas a mesma concentração de atividade da fonte emissora se expostos simultaneamente em mesmas condições de temperatura e pressão.

Entendendo, então, que a mesma concentração de atividade devida a uma exposição simultânea de dois diferentes detectores (DR-1 e CR-39) à mesma fonte esteja registrada de forma equivalente em ambos os detectores expostos, tal quantidade é relacionada e diferenciada pelas características intrínsecas destes de forma a haver um fator de sensibilidade ponderador que estabeleça a razão na diferença entre os registros dos detectores. Sendo isto verdade é possível obter um fator de sensibilidade intrínseca relativa ξ a partir da equação (25);

$$\frac{\rho_{DR}}{\rho_{CR}} = \xi \quad (25)$$

Onde ρ_{DR} corresponde à densidade traços no DR-1 e ρ_{CR} corresponde à densidade de traços no CR-39.

Uma vez determinado o fator de sensibilidade intrínseca relativa, o fator de sensibilidade e calibração F_{DR} para o DR-1 pode ser determinado a partir do fator de sensibilidade conhecido F_{CR} utilizando a relação dada pela equação;

$$F_{DR} = \xi \cdot F_{CR} \quad (26)$$

Onde F_{CR} para o dosímetro NRPB/SSI equivale a $2,8 \pm 0,2$ traços·cm⁻²(kBq·m⁻³·dia)⁻¹ (NEMAN, 2004).

Apesar do processo adotado aqui caracterizar o Durolon®, o mesmo processo permite caracterizar qualquer plástico (ou material) desconhecido, porém sensibilizável pelas emissões alfa como um detector de traços.

3.4 Ensaios de Validação Estatística

3.4.1 Z-Score

Entendendo que a resposta do detector deva ser avaliada para várias atividades se aplicado a condições ambientais, realizou-se um ensaio que consistiu em variar a concentração de atividade da fonte de $0,41 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ até $73 \text{ kBq}\cdot\text{m}^{-3}$ determinando a partir disso as densidades de traços para cada detector e a atividade registrada.

Para admitir que os resultados obtidos correspondam ao valor dispensado pela fonte na câmara de irradiação, foi aplicado a validação a partir do índice Z-Score admitindo a atividade da fonte A_f como valor padrão e a atividade no detector A como a atividade medida, sendo este índice determinado a partir da equação (ALTMAN, 1968; SHAKHASHIRO, 2007):

$$Z = \frac{A - A_f}{\sigma} \quad (27)$$

O σ corresponde ao desvio padrão na atividade transferida pela fonte conforme equação (24).

Por este índice, os valores determinados serão considerados como aceitos se $|Z| \leq 1$. Os valores serão considerados questionáveis se estiverem entre uma faixa de $2 \geq |Z| \geq 3$ e, rejeitados para qualquer valor de $|Z| > 3$.

3.4.2 Verificação da resposta de detecção do Durolon[®] pelo teste do χ^2

Para considerar o detector como eficiente em relação à medida da densidade de traços registrada, espera-se que em média a densidade total para uma área de leitura seja equivalente a qualquer outra área aleatoriamente observada no detector. Como a partícula α incidente poderá incidir com igual probabilidade em qualquer ponto da área do detector, entende-se que todas as áreas (desprezando a borda do detector) apresentem quantidades de traços iguais.

Para casos em que a quantidade de traços registrada na superfície do detector utilizado não conseguir, por algum problema estrutural que possa ocorrer em sua superfície, frações iguais de traços não é seguro dizer que a medida da densidade de traços total corresponda a atividade do radônio no ambiente.

Para verificar esta condição de resposta, foram irradiados (item 3.2) filmes de Durolon® de 1cm² de área acondicionados em dosímetro NRPB/SSI-H com atividade de 21 kBq·m³ suficientes para gerar considerável densidade de traços no detector. Após irradiação, aplicou-se protocolo padrão de revelação (item 2.5.1) com posterior medida de 10 áreas de 770x1028 µm² (aumento de 40x) aleatórias em microscópio digital, determinando-se a contagem de traços no detector.

No ensaio, deseja-se que cada área observada, tomada de forma aleatória, apresente o número de traços esperados O_i correspondente à média das áreas medidas dado por E_i . Para testar esta condição, aplicou-se o teste do χ^2 a um nível de 5% ($\pm 2\sigma$) de significância estatística, conforme a equação (LANCASTER, 1969);

$$\chi_{calc}^2 = \sum_{i=1}^{10} \frac{(O_i + E_i)^2}{E_i} < \chi_{tabelado(\varphi; 5\%)}^2 \quad (28)$$

Onde φ corresponde ao número de graus de liberdade (n-1) e $\chi_{tabelado(\varphi; 5\%)}^2$, obtido a partir da tabela da distribuição do χ^2 (BUSSAB e MORETTIN, 2010).

Será considerada como válida a resposta do detector se o valor $\chi_{calc}^2 < \chi_{tabelado}^2$ entendendo-se que para esta condição a medida individual dos traços de áreas aleatórias corresponde ao valor esperado, tornando assim válida a resposta do detector.

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Resultados para Espectrometria Gama

4.1.1 Fatores de atenuação gama para as amostras analisadas

O fator de atenuação para cada amostra foi determinado a partir da interpolação feita integrando a planilha eletrônica do software LibreOffice.org Calc (Ver 4.3.6) com o software GNUPlot (Ver 5.1.0) que desenhou as curvas a partir dos dados experimentais. Na FIG.26 observa-se a curva de atenuação para a amostra de granito Arabesco Claro. Demais curvas podem ser observadas no APÊNDICE B.

FIGURA 26: Curva de atenuação da amostra de granito 01-Arabesco Claro.

A validade da curva de atenuação obtida é aceita até o último ponto experimental. Verifica-se que para valores extremos a função tende a 0%, tal fato mostra que, para grandes energias, a correção é desprezível e, portanto desnecessária.

Os valores para os fatores de correção agrupados por densidade aparente para as amostras de granito e mármore, considerando o grupo A como menor densidade aparente e o grupo F como maior densidade aparente¹⁶ são mostrados na TAB.7 e TAB.8 respectivamente.

¹⁶ A densidade aparente foi determinada considerando a razão entre a massa em [g] da amostra pulverizada e o volume de 100 mL do frasco F100 amostrador padrão (FIG.13).

TABELA 7: Fatores de correção para atenuação para as amostras de granito por agrupamento de densidade aparente.

Densidade aparente.

			Percentual de atenuação para as energias em [keV]									
ID	Localidade	Densidade [g·cm ⁻³]	⁶⁰ Co		¹³⁷ Cs	¹⁵² Eu						
			1173,18	1332,39	661,67	121,8	244,76	344,37	778,98	964,09	1457,57	
			%	%	%	%	%	%	%	%	%	
02	Ecoporanga	1,546	6,10	7,99	10,93	35,96	23,79	19,63	11,02	9,27	4,15	A
01	Ecoporanga	1,566	6,89	4,77	10,93	27,12	15,63	14,71	10,82	8,92	4,15	
09	Ecoporanga	1,588	9,26	7,83	12,27	28,79	17,14	13,68	8,57	8,56	5,35	
20	Afonso Claudio	1,623	8,23	8,80	12,97	31,43	15,45	14,96	10,22	8,66	7,59	B
13	São Domingos do Norte	1,637	8,03	8,79	13,30	33,69	20,52	18,24	9,08	9,36	4,33	
08	Colatina	1,670	8,38	7,27	13,74	28,97	19,26	15,29	8,69	10,17	7,45	
06	Mimoso do Sul	1,698	9,66	8,98	14,15	51,27	23,31	23,65	15,61	12,50	6,52	
14	Barra de São Francisco	1,718	10,31	10,04	14,17	51,16	31,96	28,93	15,56	13,73	8,23	C
04	Castelo	1,743	8,32	8,34	15,23	60,31	29,92	31,09	17,14	14,34	5,31	
12	Água Branca	1,758	11,23	10,48	14,75	38,25	23,31	20,72	13,09	11,03	5,71	
15	Venda Nova do Imigrante	1,762	10,11	9,66	14,78	44,81	23,86	21,43	10,94	9,43	5,72	
03	Ecoporanga	1,769	9,68	11,06	13,30	54,60	33,25	29,62	17,97	14,72	10,53	
16	Pancas	1,788	10,25	7,58	15,34	34,73	18,38	17,56	12,06	11,28	6,57	
07	Barra de São Francisco	1,790	11,02	10,29	16,28	39,94	24,78	22,12	13,83	12,82	5,71	
19	Afonso Claudio	1,794	10,11	9,96	16,45	34,14	22,32	19,71	12,06	9,86	6,57	D
24	Nova Venécia	1,809	13,91	12,91	16,87	68,57	43,63	35,97	18,45	16,13	5,31	
10	Água Branca	1,823	10,33	10,40	17,57	50,54	29,91	27,67	13,86	15,82	6,94	
11	Ecoporanga	1,827	12,21	10,89	17,14	43,43	29,35	24,96	16,30	13,96	6,52	
17	Barra de São Francisco	1,844	11,29	9,83	16,96	44,91	28,25	25,91	12,91	12,32	7,96	
23	Afonso Claudio	1,848	11,50	12,12	17,61	40,92	24,53	21,31	14,28	11,33	9,20	
18	Afonso Claudio	1,894	14,70	12,29	19,39	40,99	30,84	25,32	15,61	13,71	10,62	E
05	Baixo Guandú	1,901	8,32	8,34	18,57	60,31	29,92	31,09	17,14	14,34	5,31	
21	Afonso Claudio	1,905	12,04	9,72	18,12	40,53	24,84	21,05	14,83	12,28	8,93	
22	Afonso Claudio	1,909	13,55	12,92	19,86	48,68	34,95	26,52	17,40	16,94	11,04	

O agrupamento por densidade em relação à energia atenuada sugere que, para alguns grupos como, por exemplo, o grupo A na região de Ecoporanga, a composição mineralógica possa ser semelhante. Entretanto, apesar da densidade aparente ser aproximadamente a mesma, os grupos D e E que relacionam mármore e granitos bem diferenciados em sua composição (item 2.1.1 e item 2.1.2), apresentam densidade aparente e fatores de correção correspondentes.

TABELA 8: Fatores de correção para atenuação para as amostras de mármore por agrupamento de densidade aparente.

ID	Localidade	Densidade [g·cm ⁻³]	Percentual de atenuação para as energias em [keV]									
			⁶⁰ Co		¹³⁷ Cs	¹⁵² Eu						
			1173,18	1332,39	661,67	121,8	244,76	344,37	778,98	964,09	1457,57	
			%	%	%	%	%	%	%	%	%	
26	Cachoeiro do Itapemirim	1,835	9,13	10,68	15,96	38,91	23,43	22,10	11,90	13,21	8,12	D
27	Cachoeiro do Itapemirim	1,849	10,51	10,69	17,19	36,39	22,37	21,62	14,08	14,75	9,76	
28	Cachoeiro do Itapemirim	1,859	11,39	10,07	15,96	37,15	21,97	20,87	13,90	13,77	8,12	
29	Castelo	1,944	15,48	8,42	18,07	37,39	24,07	23,62	13,79	14,47	6,27	E
30	Itaoca	1,987	13,01	12,17	19,24	41,17	30,35	20,87	13,90	13,77	8,12	
31	Itaoca	2,042	13,37	13,40	20,42	42,61	33,76	28,18	19,14	17,42	11,50	F
25	Cachoeiro do Itapemirim	2,104	15,22	14,70	21,98	50,27	30,31	29,67	17,41	16,73	11,50	

Para melhor visualização, a FIG. 27 mostra a relação entre as densidades aparentes calculadas e energias em relação aos percentuais de atenuação determinados.

FIGURA 27: Atenuação gama para as amostras analisadas. A) visão geral. B) Energias iniciais (200 a 800keV). C) Energias acima de 800keV.

4.1.2 Concentrações de atividade e equivalente em rádio

As concentrações de atividade dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , conjuntamente com o respectivo rádio equivalente (Ra_{eq}), calculado pela equação (13), para as amostras de granitos estão expressos na TAB.9 e visualizados na FIG.28.

TABELA 9: Concentrações de Atividades e Rádio equivalente para as amostras de granitos.

ID	Localização	Nome Comercial	Valores Médios			Ra_{eq} $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$
			^{226}Ra $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	^{232}Th $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	^{40}K $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	
01	Ecoporanga	Arabesco Claro	24 ± 2	70 ± 7	1202 ± 84	216 ± 1
02	Ecoporanga	Santa Helena	18 ± 1	75 ± 2	1128 ± 263	210 ± 1
03	Ecoporanga	Santa Cecília	20 ± 1	79 ± 2	1266 ± 95	230 ± 1
04	Castelo	Cinza Corumbá	46 ± 1	224 ± 6	1267 ± 149	465 ± 1
05	Baixo Guandú	Verde Ubatuba	13 ± 1	12 ± 1	1485 ± 16	145 ± 1
06	Mimoso do Sul	Cinza Andorinha	43 ± 1	158 ± 3	1193 ± 167	360 ± 1
07	Barra de São Francisco	Amarelo Icarai	42 ± 1	157 ± 3	1214 ± 170	360 ± 1
08	Colatina	Preto São Gabriel	40 ± 1	151 ± 2	1203 ± 169	350 ± 1
09	Ecoporanga	Arebesco Marocco	11 ± 1	48 ± 2	1273 ± 41	180 ± 1
10	Águia Branca	Amarelo Ornamental	16 ± 1	73 ± 1	1202 ± 92	210 ± 1
11	Ecoporanga	Giallo Marocco	15 ± 1	43 ± 6	1326 ± 27	180 ± 1
12	Águia Branca	Branco Dallas	21 ± 3	67 ± 14	1381 ± 179	220 ± 2
13	São Domingos do Norte	Branco Siena	13 ± 1	45 ± 1	921 ± 229	150 ± 1
14	Barra de São Francisco	Fortaleza / Quartzo	24 ± 2	49 ± 9	1281 ± 24	190 ± 2
15	Venda Nova do Imigrante	Cinza Ocre	12 ± 3	100 ± 27	1446 ± 36	265 ± 2
16	Pancas	Branco Vitória	15 ± 1	19 ± 1	1185 ± 65	130 ± 1
17	Barra de São Francisco	Branco Dallas	10 ± 1	26 ± 2	1166 ± 48	140 ± 1
18	Afonso Claudio	Iberê Crema Bordeaux	289 ± 8	41 ± 2	531 ± 5	390 ± 3
19	Afonso Claudio	Iberê Mombasa	483 ± 55	95 ± 7	1105 ± 4	700 ± 7
20	Afonso Claudio	Iberê Ballagio	5 ± 1	9 ± 4	1187 ± 218	110 ± 1
21	Afonso Claudio	Iberê Prado	143 ± 3	54 ± 2	348 ± 46	250 ± 2
22	Afonso Claudio	Iberê Vitara	6 ± 1	28 ± 5	1642 ± 167	170 ± 1
23	Barra de São Francisco	New Venatian gold	12 ± 1	53 ± 1	1394 ± 102	195 ± 1
24	Nova Venécia	Branco Primata	21 ± 1	79 ± 5	1066 ± 105	215 ± 1

* Os valores em negrito correspondem as maiores atividades determinadas para o radionuclídeo.

** Valores em destaque apresentam resultados do equivalente em rádio superiores a $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$.

FIGURA 28: Concentrações de atividade para ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K com o Ra_{eq} para as amostras de granito avaliadas. Em destaque os valores que superam o valor de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ de Ra_{eq} .

Os resultados mostram que, para todos os granitos, a maior concentração de atividade correspondente ao ^{40}K , dando destaque ao granito Iberê Vitara, que apresentou $1642 \pm 167 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. O maior valor determinado de ^{232}Th corresponde ao granito Cinza Corumbá, que apresentou $224 \pm 6 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Em relação ao ^{226}Ra , a amostra de granito Iberê Mombasa apresentou concentração de atividade de $483 \pm 55 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$.

Na FIG.28, observa-se, ainda, que os valores determinados para o equivalente em rádio, Ra_{eq} , mostraram-se abaixo do limite de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para a maioria das amostras estudadas, com exceção das amostras Iberê Crema Bordeaux que apresentou $390 \pm 3 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$, Cinza Corumbá que apresentou $465 \pm 1 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ e Iberê Mombasa que apresentou $700 \pm 7 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$. Avalia-se, ainda, que, em acordo com a classificação proposta na TAB.4 (item 2.4.2), os granitos podem ser avaliados como Classe 1 e os excedentes ao limite proposto podem ser classificados como Classe 2.

Na TAB.10 e FIG.29, estão apresentados as concentrações de atividade dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K conjuntamente com o respectivo rádio equivalente (Ra_{eq}) calculado pela equação (13) para as amostras de mármore avaliadas no presente estudo.

TABELA 10: Concentrações de Atividades e Rádio equivalente para as amostras de mármore.

ID	Localização	Nome Comercial	Valores Médios em Bq·kg ⁻¹									Ra _{eq}		
			²²⁶ Ra			²³² Th			⁴⁰ K			Bq·kg ⁻¹		
25	Cachoeiro do Itapemirim	Cintilante	2,2	±	0,3	5,6	±	1,8	18,8	±	6,7	12,0	±	0,5
26	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Extra	2,8	±	0,2	3,5	±	0,8	29,0	±	4,6	10,0	±	0,5
27	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Rajado	2,4	±	0,4	6,8	±	0,7	20,2	±	5,4	14,0	±	1,0
28	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Azulado	1,9	±	0,2	3,2	±	0,4	8,8	±	1,8	7,0	±	0,5
29	Castelo	São Cristovão	2,1	±	0,5	3,3	±	0,2	24,4	±	5,6	9,0	±	1,0
30	Itaoca	Pinta Verde	7,0	±	6,2	6,0	±	0,1	18,5	±	6,5	17,0	±	2,5
31	Itaoca	Branco Carrarinha	15,9	±	1,4	7,9	±	5,4	28,6	±	4,9	30,0	±	1,5

Os mármore avaliados apresentam valores consideravelmente inferiores aos determinados para os granitos e, em média, apresentam valores muito próximos, podendo todos ser classificados como Classe 1, em acordo com os limites propostos para as aplicações possíveis expostos na TAB.4 (item 2.4.2).

FIGURA 29: Concentrações de atividade para ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K com o Ra_{eq} para as amostras de mármore avaliadas.

Observa-se que todos os valores para o Ra_{eq} determinados par as amostras de mármore estão abaixo de 370 Bq·kg⁻¹.

Na TAB.11, estão apresentados as concentrações de atividade dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K encontrados em literatura e médios avaliadas no presente estudo para as amostras de mármore e granitos.

TABELA 11: Resultados reportados em literatura e a média determinada para as concentrações nas rochas estudadas.

Procedência		^{226}Ra	^{232}Th	^{40}K	Referência
		$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	$\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$	
Granito	Espírito Santo	110 ± 10	55 ± 5	1100 ± 100	Presente Trabalho
	China	71,15	112	672	(YA-XIN <i>et al.</i> , 2005)
	Egito	187 ± 90	118 ± 14	852 ± 297	(NOUR, 2005)
	Itália	153 ± 13	360 ± 30	1600 ± 100	(RIGH & BRUZZI, 2006)
	Paraná	91 ± 5	156 ± 8	1604 ± 94	(FERREIRA, 2013)
	Brasil	169 ± 39	449 ± 122	2029 ± 95	(ANJOS <i>et al.</i> , 2005)
	Mundo	32	45	420	(UNSCEAR, 2008)
Mármore	Espírito Santo	5 ± 1	5 ± 1	21 ± 5	Presente Trabalho
	Índia	12 ± 3	3 ± 2	10 ± 3	(SAHHOO <i>et al.</i> , 2007)
	Egito	40 ± 8	20 ± 3	157 ± 7	(ADEL <i>et al.</i> , 2005)
	Algeria	23 ± 2	18 ± 2	310 ± 3	(AMRANI <i>et al.</i> , 2001)
	Cameroon	8 ± 2	0,35 ± 0,32	19 ± 2	(NGACHIN <i>et al.</i> , 2007)
	Kuwait	3,9 ± 0,5	0,22 ± 0,08	3,7 ± 0,5	(BOU-RABEE <i>et al.</i> , 1996)
	Jordânia	20,1	11,4	85	(AHMAD <i>et al.</i> , 1997)
	Turquia	23	15	149	(CEVIK <i>et al.</i> , 2010)
	Nigeria	2	1	7	(ADEMOLA <i>et al.</i> , 2008)
	China	8 - 157	6 - 166	44 - 1353	(LU <i>et al.</i> , 2007)
	Italia	79 ± 2,6	35,3 ± 0,8	15,1 ± 1,1	(MICHAEL <i>et al.</i> , 2010)
	Mundo	77	84	1200	(UNSCEAR, 2008)

Observa-se que, para os granitos avaliados o valor médio para a concentração de atividade do ^{226}Ra e ^{232}Th estão abaixo das médias reportadas para os demais produtores, sendo comparáveis a média nacional e pouco acima da média mundial. Em relação ao ^{40}K para estas amostras de granito, estes representam em torno de 54% do valor da média nacional.

Para as amostras de Mármore, observa-se que os valores para as concentrações de ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , são inferiores a grande maioria dos produtores de rochas ornamentais do mundo sendo comparáveis somente aos Mármore da Nigéria, Índia e Camaroon.

4.1.3 Índice de risco a exposição gama externa e interna e a estimativa de dose efetiva anual.

Na TAB.12 estão expressos os valores determinados para o índice de risco interno e externo e a estimativa de dose anual calculados pelas equações (14), (15) e (17) relacionada à exposição gama para as amostras de granitos.

TABELA 12: Índice de exposição interna e externa e dose anual para os Granitos avaliados.

ID	Localização	Nome Comercial	Hex	Hin	D	E
					[$\mu\text{Gy.h}^{-1}$]	[mSv.ano^{-1}]
01	Ecoporanga	Arabesco Claro	0,583	0,648	0,103	0,905
02	Ecoporanga	Santa Helena	0,573	0,621	0,101	0,882
03	Ecoporanga	Santa Cecília	0,622	0,675	0,110	0,962
04	Castelo	Cinza Corumbá	1,253	1,378	0,209	1,836
05	Baixo Guandú	Verde Ubatuba	0,388	0,423	0,075	0,656
06	Mimoso do Sul	Cinza Andorinha	0,974	1,089	0,165	1,447
07	Barra de São Francisco	Amarelo Icarai	0,970	1,084	0,165	1,443
08	Colatina	Preto São Gabriel	0,940	1,049	0,160	1,400
09	Ecoporanga	Arebesco Marocco	0,481	0,511	0,087	0,766
10	Águia Branca	Amarelo Ornamental	0,575	0,619	0,102	0,891
11	Ecoporanga	Giallo Marocco	0,483	0,523	0,088	0,773
12	Águia Branca	Branco Dallas	0,602	0,658	0,108	0,944
13	São Domingos do Norte	Branco Siena	0,401	0,437	0,072	0,629
14	Barra de São Francisco	Fortaleza / Quartzito	0,523	0,589	0,095	0,828
15	Venda Nova do Imigrante	Cinza Ocre	0,719	0,753	0,126	1,107
16	Pancas	Branco Vitória	0,357	0,397	0,067	0,590
17	Barra de São Francisco	Branco Dallas	0,371	0,398	0,069	0,606
18	Afonso Claudio	Iberê Crema Bordeaux	1,048	1,828	0,180	1,578
19	Afonso Claudio	Iberê Mombasa	1,902	3,208	0,327	2,863
20	Afonso Claudio	Iberê Ballagio	0,297	0,312	0,058	0,505
21	Afonso Claudio	Iberê Prado	0,668	1,053	0,113	0,993
22	Afonso Claudio	Iberê Vitara	0,462	0,482	0,087	0,760
23	Barra de São Francisco	New Venatian gold	0,526	0,559	0,096	0,838
24	Nova Venécia	Branco Primata	0,581	0,637	0,102	0,890

* Os valores em destaque excedem os limites propostos de $1,5 \text{ mSv.ano}^{-1}$ para o Hin e Hex e 1 mSv.ano^{-1} para a dose anual E.

FIGURA 30: Índices de risco a exposição gama externo e interno e a estimativa de dose efetiva anual para as amostras de granito avaliadas.

Em relação aos índices de exposição interno e externo, que podem ser observados de forma comparativa na FIG.30, os granitos Cinza Corumbá, Iberê Crema Bordeaux, Iberê Bellagio e Iberê Prado apresentaram valores superiores a 1, o que indica que a dose proporcionada anual supera o limite de $1,5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ para uma aplicação segura, segundo sugere a ICRP(1997). Observou-se também que os granitos Iberê Prado, Preto São Gabriel e Amarelo Icaraí apresentam apenas o índice de exposição interna superior ao limite proposto. Os demais granitos apresentam os valores para este índice abaixo do limite proposto.

A avaliação da estimativa de dose anual absorvida no ar devido à emissão gama a 1 m do solo (dose nas gônadas), mostrou que os granitos Cinza Corumbá ($1,836 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$), Cinza Andorinha ($1,447 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$), Amarelo Icaraí ($1,443 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$), Preto São Gabriel ($1,400 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$), Cinza Ocre ($1,107 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$) e Iberê Crema Bordeaux ($1,578 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$) apresentaram valores acima do limite proposto de $1,0 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$. Destaca-se aqui o granito Iberê Mombasa, que, de acordo com os critérios estabelecidos no item 2.4.4, apresentou valor quase três vezes acima do valor limite ($2,863 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$). Os demais granitos apresentaram valores de dose estimada anual abaixo do limite proposto.

Na TAB.13 estão expressos os valores determinados para o índice de risco interno e externo e a dose anual relacionada à exposição gama para as amostras de mármore.

TABELA 13: Índice de exposição interna e externa e dose anual para os mármore avaliados.

ID	Localização	Nome Comercial	Hex	Hin	D	E
					[$\mu\text{Gy.h}^{-1}$]	[mSv.ano^{-1}]
25	Cachoeiro do Itapemirim	Cintilante	0,032	0,038	0,005	0,046
26	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Extra	0,027	0,035	0,005	0,041
27	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Rajado	0,037	0,044	0,006	0,053
28	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Azulado	0,019	0,025	0,003	0,028
29	Castelo	São Cristovão	0,024	0,029	0,004	0,035
30	Itaoca	Pinta Verde	0,046	0,065	0,008	0,067
31	Itaoca	Branco Carrarina	0,080	0,122	0,013	0,117

Para todos os mármore avaliados estes índices de exposição interna e externa, bem como a estimativa de dose anual mostraram-se consideravelmente abaixo do limite anual proposto. Para efeito comparativo e melhor avaliação, estes valores estão visualizados na FIG.31.

FIGURA 31: Índices de risco à exposição gama externo e interno e a estimativa de dose efetiva anual para as amostras de mármore avaliadas.

4.1.4 Índices de exposição alfa e gama

Os valores determinados para estes índices aplicando as equações (18) e (19) para as amostras de granito estão expressos na TAB.14.

TABELA 14: índices de exposição gama para os granitos avaliados.

ID	Localização	Nome Comercial	I α	I γ
01	Ecoporanga	Arabesco Claro	0,120	0,829
02	Ecoporanga	Santa Helena	0,089	0,811
03	Ecoporanga	Santa Cecília	0,099	0,883
04	Castelo	Cinza Corumbá	0,231	1,696
05	Baixo Guandú	Verde Ubatuba	0,064	0,596
06	Mimoso do Sul	Cinza Andorinha	0,213	1,331
07	Barra de São Francisco	Amarelo Icarai	0,210	1,327
08	Colatina	Preto São Gabriel	0,201	1,288
09	Ecoporanga	Arebesco Marocco	0,055	0,703
10	Águia Branca	Amarelo Ornamental	0,080	0,819
11	Ecoporanga	Giallo Marocco	0,074	0,707
12	Águia Branca	Branco Dallas	0,103	0,865
13	São Domingos do Norte	Branco Siena	0,066	0,577
14	Barra de São Francisco	Fortaleza / Quartzo	0,121	0,755
15	Venda Nova do Imigrante	Cinza Ocre	0,062	1,022
16	Pancas	Branco Vitória	0,073	0,536
17	Barra de São Francisco	Branco Dallas	0,051	0,553
18	Afonso Claudio	Iberê Crema Bordeaux	1,444	1,342
19	Afonso Claudio	Iberê Mombasa	2,416	2,450
20	Afonso Claudio	Iberê Ballagio	0,027	0,460
21	Afonso Claudio	Iberê Prado	0,713	0,863
22	Afonso Claudio	Iberê Vitara	0,030	0,708
23	Barra de São Francisco	New Venatian gold	0,061	0,769
24	Nova Venécia	Branco Primata	0,104	0,817

* Valores em destaque superam o limite estabelecido para o índice.

Para os valores avaliados para o índice I α (item 2.4.5), para o qual o limite não deve exceder o valor 1, que representa 200 Bq·kg⁻¹, apenas o granito Iberê Crema Bordeaux apresentou um valor cerca de 44,4 % maior que o índice proposto resultante de uma atividade de 288,8 Bq·kg⁻¹ de ²²⁶Ra para este granito e Iberê Mombasa que apresentou um valor de cerca de 141,6% maior que o índice proposto, resultante de uma atividade de 483,2 Bq·kg⁻¹ de ²²⁶Ra para este granito.

Para o índice I_{γ} (item 2.4.6), destacam-se valores acima de $1 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$ para os granitos Cinza Corumbá, Cinza Andorinha, Amarelo Icaraí, Preto São Gabriel, Arabesco Marocco, Cinza Ocre, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa que apresentou o maior valor dentro todos.

FIGURA 32: Índices de exposição alfa e gama e os limites para uso interno em residências, sugeridos pela Comissão Europeia (EC, 1999) para as amostras de granito.

Na FIG.32 em relação ao índice I_{α} (item 2.4.5), para o qual os valores devem ser menores ou iguais a 0,5, representando $100 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ (limite que torna improvável o incremento na exalação de ^{222}Rn devido à presença de ^{226}Ra), observa-se que, com exceção dos granitos Iberê Crema Bordeaux, Iberê Mombasa e Iberê Prado, os demais granitos avaliados estão abaixo do limite proposto.

Ainda na FIG.32, em relação ao índice I_{γ} (item 1.4.6), observa-se que os granitos Cinza Corumbá, Cinza Andorinha, Amarelo Icaraí, Preto São Gabriel, Cinza Ocre, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa apresentam valores entre $1 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$ e $6 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$ estando os demais granitos entre $0,3 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$ e $1 \text{ mSv}\cdot\text{ano}^{-1}$ (EC, 1999).

Os valores determinados para as amostras de mármore avaliadas estão expressos na TAB.15.

TABELA 15: índices de exposição gama para os mármore avaliados.

ID	Localização	Nome Comercial	I_α	I_γ
25	Cachoeiro do Itapemirim	Cintilante	0,011	0,042
26	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Extra	0,014	0,037
27	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Rajado	0,012	0,049
28	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Azulado	0,010	0,025
29	Castelo	São Cristovão	0,010	0,032
30	Itaoca	Pinta Verde	0,035	0,060
31	Itaoca	Branco Carrarinha	0,079	0,102

Para os mármore avaliados, tanto para o índice I_α quanto para o índice I_γ , todos os valores determinados estão consideravelmente abaixo dos valores limite.

FIGURA 33: Comparativo entre os índices de exposição alfa e gama para as amostras de Mármore.

Em observação da FIG.33, é possível destacar ainda que todos os valores para o índice I_γ para este material estão abaixo do limite desejável de $0,3 \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$ proposto pela Comissão Europeia (EC, 1999).

4.2 Resultados para a Caracterização do Durolon® como Detector SSNTD.

4.2.1 Resultados da caracterização pós-ataque químico por microscopia de força atômica e microscopia digital.

Aplicando a técnica de microscopia de força atômica AFM, foram estudados os defeitos estruturais que podem conduzir a erros nas contagens, dentre eles: manchas na superfície do detector (FIG. 34-1), traços mais claros e com tamanhos inferiores (FIG. 34-2) e estruturas aparentando pontos ou manchas escurecidas (FIG. 34-3).

FIGURA 34: Imagem sem tratamento obtida com microscópio digital em modo transmissão.

Defeitos na estrutura do detector podem surgir a partir da diferenciação da própria estrutura do material que compõe o plástico que podem influenciar no processo de revelação. Para estudar tal efeito, a FIG.35 mostra a imagem de uma superfície similar à região 1 na FIG.34.

FIGURA 35: Análise por AFM de defeitos na estrutura superficial do Duroton®. A) Imagem 3D da estrutura avaliada. B) Imagem de diferenciação da estrutura. C) Profundidade da estrutura da mancha clara no detector.

Na figura, observa-se que o traço, destacado na cor azul com maior profundidade, diferencia-se das manchas mais claras menos profundas. As manchas mais claras não representam traços a serem contados e devem ser desconsideradas no processo de contagem. Os pontos escuros diferenciados na FIG. 35B em rosa são elevações e não devem ser contados como traços.

FIGURA 36: Análise AFM sobre a profundidade dos traços e picos no Duroton®. A) Estrutura 3D analisada. B) Medida do traço de menor profundidade e pico. C) Corte do traço maior e estrutura defeituosa similar ao traço.

A imagem na FIG. 36A mostra duas estruturas aparentes no microscópio convencional como estruturas similares a traços. Observa-se na FIG. 36B que o falso traço apresenta profundidade de 80 μm que, em comparação ao traço real observado com medida de 200 μm é bem diferenciado. Tal diferenciação ocasiona a diferença na tonalidade observada no microscópio convencional revelando assim um defeito de estrutura. Na FIG. 36C, é possível ainda comparar as profundidades do traço real com a mancha de superfície, revelando novamente um novo defeito de estrutura.

Observa-se ainda que o ataque químico pode não remover partes da superfície do plástico, ocasionando pontos escurecidos que surgem na imagem analisada como elevações. Tais elevações sugerem que o protocolo de revelação aplicado removeu uma camada com aproximadamente 80 μm da superfície do detector.

FIGURA 37: Análise AFM sobre a altura dos patamares no Durolon®. A) Estrutura 3D analisada. B) Medida do patamar.

Manchas escuras como a observada na região 1 da FIG. 34 representam patamares de elevação a partir da base da estrutura do detector. Tais estruturas observáveis na FIG. 37A e B apresentam cerca de 1000 nm e surgem na imagem do microscópio como manchas desfocadas e são defeitos de estrutura a serem desconsiderados no processo de contagem.

Como tais figuras são relativamente inferiores em dimensão em relação aos traços ocasionados pelas partículas alfa, a correção foi obtida aumentando o ganho na imagem do microscópio digital, fazendo com que tais estruturas desaparecessem, sendo mantidas e observadas somente as estruturas relacionadas com os traços conforme observado na FIG. 38.

FIGURA 38: A esquerda imagem sem tratamento e a direita imagem com o ganho ajustado.

Na FIG. 39 observa-se medidas de diâmetros dos traços para um detector Durodon[®] irradiado com partículas alfa do ^{222}Rn , mostrando que, em média, eles apresentam diâmetros entre 25 μm e 28 μm .

FIGURA 39: Diâmetros dos traços e histograma de diâmetros.

4.2.2 Obtenção do fator de calibração e sensibilidade pela técnica do fator de sensibilidade intrínseca

A TAB.16 mostra a relação percentual entre as densidades de traços obtidas para cada ensaio.

TABELA 16: Sensibilidade intrínseca e fator de calibração para o detector Durolon®

Detector	Atividade	Densidade de traços		ξ %	
	fonte	traços·cm ⁻²			
	kBq·m ⁻³	CR-39	Durolon®		
1	24,4	7950±90	4950±80	62,0±1,0	
2	48,8	16100±130	9570±100	59,0±1,0	
3	12,2	4980±70	3090±60	62,0±1,0	
4	73,0	21200±150	12200±110	58,0±1,0	
5	4,1	2570±50	1540±40	60,0±2,0	
6	8,2	4580±70	2690±50	59,0±1,0	
7	0,8	1080±30	690±30	64,0±3,0	
8	0,4	880±30	200±20	24,0±3,0	
Contagem de fundo		90±10	130±10		
Sensibilidade intrínseca relativa média:				57,3±2,0	
				F _{CR}	F _{DR}
Fatores de calibração para os detectores [item 3.3, equação (26)]:				2,80±0,20	1,60±0,10

Os resultados obtidos mostram que a sensibilidade relativa intrínseca entre o Durolon® e o CR-39 obtida a partir das densidades de traço observadas pode ser suposta como 57,3±2,0 %, resultando em um fator de calibração de 1,60±0,10 traços cm⁻² (kBq m⁻³dia)⁻¹ para o Durolon® obtido a partir da expressão (26) .

Por outro lado, o mesmo valor de percentual relativo pode ser estabelecido pela relação de correlação gráfica entre a densidade de traços do Durolon® em função da densidade de traços para o CR-39, conforme FIG.40.

FIGURA 40: Correlação entre as densidades de traços nos detectores Durolon® e CR-39.

Observa-se pela correlação entre as densidades de traços que o coeficiente angular obtido é de 0,585 (58,5%), reforçando a hipótese da relação intrínseca proposta no item 3.3.

Para verificar a relação de proximidade entre as atividades determinadas para cada detector, aplicou-se o Z-score. Os resultados para o teste estão expostos na TAB.17 e, para melhor visualização, expostos na FIG.41;

TABELA 17: Atividades determinadas para o utilizando o CR-39 e o Durolon®.

Detector	A _s kBq·m ⁻³	Atividade kBq·m ⁻³		Z-Score	
		A _{CR}	A _{DR}	CR	Durolon®
1	24,4±1,0	24,2±5,0	30,1±5,0	-0,05	0,75
2	48,8±2,0	51,1±7,0	50,1±7,0	0,35	0,05
3	12,2±1,0	15,6±4,0	15,7±4,0	0,50	0,45
4	73,0±3,0	67,4±8,0	64,0±8,0	-0,80	-1,50
5	4,1±0,2	7,9±3,0	7,4±3,0	0,55	0,50
6	8,2±0,3	14,3±4,0	13,5±4,0	0,90	0,75
7	0,82±0,03	3,1±2,0	2,9±2,0	0,35	0,30
8	0,41±0,02	2,5±2,0	0,4±0,1	0,30	-0,01

FIGURA 41: Índice Z-Score entre os detectores e a atividade padrão.

O índice Z-Score determinado mostra que os valores correspondem à atividade da fonte considerando que todos atendem ao limite de aceitabilidade deste índice, $-1 \leq Z \leq 2$.

A relação entre as atividades determinadas pelos detectores é observada na FIG.42.

FIGURA 42: Atividade determinada para os detectores Durodon[®] (DR) e CR-39 (CR).

Observa-se que o detector CR-39 apresenta maior sensibilidade para baixas atividades, saturando em atividades mais elevadas, ao passo que o DR-1 apresenta sensibilidade menor ($57,3 \pm 2,0$ % menos), o que permite que este detector realize a leitura de exposições a condições mais elevadas de atividade.

4.2.3 Resultados da verificação da resposta de detecção do Durolon®

Na TAB.18 estão os resultados para o ensaio de resposta do Durolon®:

TABELA 18: Avaliação da resposta do detector

#	Traços Observados	Desvio	χ^2
1	57	6	0,57
2	57	6	0,57
3	59	4	0,25
4	61	2	0,06
5	63	1	0,00
6	64	1	0,02
7	65	2	0,06
8	66	3	0,14
9	69	6	0,57
10	69	6	0,57
Média	63	S²=	20
Desvio	4	S=	4
		CV=	7%
		S₁₀=	1,4

No ensaio foram avaliadas 10 áreas aleatórias e obteve-se o valor de 2,83 para o χ^2 calculado, sendo o χ^2 tabelado considerando 95% ($\pm 2\sigma$) de significância estatística e 9 graus de liberdade igual a 3,33, o que para este teste considera-se que os valores parciais observados na leitura na superfícies do detector correspondem ao valor esperado.

4.3 Medidas de Radônio

4.3.1 Concentração de radônio determinada para os granitos e mármore aplicando o Durolon®

A concentração de radônio determinada com o uso do Durolon® cujo fator determinado foi de $(1,6 \pm 0,1)$ traços $\text{cm}^{-2}(\text{KBq m}^{-3}\text{dia})^{-1}$, para as amostras de granito, em câmara de exalação, pode ser observada na TAB.19;

TABELA 19: Atividade determinada para os granitos por detecção passiva com Durolon®.

ID	Localização	Nome Comercial	ρ Traços $\cdot \text{cm}^{-2}$	Atividade $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}$
01	Ecoporanga	Arabesco Claro	599 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
02	Ecoporanga	Santa Helena	1064 $\pm$ 12	250 $\pm$ 30
03	Ecoporanga	Santa Cecília	673 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
04	Castelo	Cinza Corumbá	514 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
05	Baixo Guandú	Verde Ubatuba	746 $\pm$ 12	200 $\pm$ 30
06	Mimoso do Sul	Cinza Andorinha	587 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
07	Barra de São Francisco	Amarelo Icarai	1040 $\pm$ 12	250 $\pm$ 30
08	Colatina	Preto São Gabriel	709 $\pm$ 12	200 $\pm$ 30
09	Ecoporanga	Arebesco Marocco	734 $\pm$ 12	200 $\pm$ 30
10	Águia Branca	Amarelo Ornamental	612 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
11	Ecoporanga	Giallo Marocco	697 $\pm$ 12	200 $\pm$ 30
12	Águia Branca	Branco Dallas	734 $\pm$ 12	200 $\pm$ 30
13	São Domingos do Norte	Branco Siena	697 $\pm$ 12	200 $\pm$ 30
14	Barra de São Francisco	Fortaleza / Quartzito	636 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
15	Venda Nova do Imigrante	Cinza Ocre	526 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
16	Pancas	Branco Vitória	563 $\pm$ 12	150 $\pm$ 20
17	Barra de São Francisco	Branco Dallas	1101 $\pm$ 12	300 $\pm$ 40
18	Afonso Claudio	Iberê Crema Bordeaux	1554 $\pm$ 12	400 $\pm$ 50
19	Afonso Claudio	Iberê Mombasa	9321 $\pm$ 110	2400 $\pm$ 300
20	Afonso Claudio	Iberê Ballagio	1138 $\pm$ 12	300 $\pm$ 40
21	Afonso Claudio	Iberê Prado	4538 $\pm$ 61	1150 $\pm$ 140
22	Afonso Claudio	Iberê Vitara	453 $\pm$ 12	100 $\pm$ 10
23	Barra de São Francisco	New Venatian gold	807 $\pm$ 24	200 $\pm$ 30
24	Nova Venécia	Branco Primata	1199 $\pm$ 12	300 $\pm$ 40

Valores em negrito estão acima do limite de $200 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, conforme Normas Canadenses, (CNSC, 2000).
Valor em destaque está abaixo do limite de $148 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-3}$, conforme estabelecido pela USEPA (2015).

Observa-se que, exceto para os granitos Santa Helena, Amarelo Icaraí, Branco Dallas, Iberê Crema Bordeaux, Iberê Mombasa, Iberê Bellagio, Iberê Prado e Branco Primata, apresentaram valores de concentração de radônio superiores a $200 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ estabelecidos pelas Normas Canadenses (CNSC, 2000) e, em relação aos limites propostos pela USEPA (2015), com exceção do Granito Iberê Vitara, todos os demais estão acima de $148 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ [$4\text{pCi}\cdot\text{L}^{-1}$].

A atividade determinada com o uso do Durodon® com o fator de calibração de $(1,6\pm 0,1) \text{ traços cm}^{-2}(\text{kBq m}^{-3}\text{dia})^{-1}$ para as amostras de mármore em câmara de exalação pode ser observada na TAB.20;

TABELA 20: Atividade determinada para os mármore por detecção passiva com Durodon®

ID	Localização	Nome Comercial	ρ Traços $\cdot\text{cm}^{-2}$	Atividade $\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$
25	Cachoeiro do Itapemirim	Cintilante	807 ± 24	200 ± 25
26	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Extra	881 ± 12	225 ± 30
27	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Rajado	391 ± 12	100 ± 15
28	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Azulado	330 ± 12	85 ± 10
29	Castelo	São Cristovão	355 ± 12	90 ± 10
30	Itaoca	Pinta Verde	300 ± 37	80 ± 10
31	Itaoca	Branco Carrarinha	391 ± 12	100 ± 15

Valores em negrito superam o limite de $148 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ [$4\text{pCi}\cdot\text{L}^{-1}$] aplicado pela USEPA (2015).

As concentrações de radônio determinadas para os mármore em relação aos limites plicados pelas Normas Canadenses (CNSC, 2000), apresentaram-se relativamente baixas com exceção do mármore Branco Extra. Em relação ao limite estabelecido pela USEPA (2015), o mármore Cintilante e o mármore Branco Extra mostraram valores acima do limite estabelecido de $148 \text{ Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ [$4\text{pCi}\cdot\text{L}^{-1}$].

Para efeito comparativo e melhor visualização, os valores para as concentrações de radônio nos granitos e mármore avaliados estão dispostos na FIG.43.

FIGURA 43: Comparativo para as concentrações de radônio determinada para os granitos e mármore.

A concentração da maioria dos granitos está compreendida entre as faixas de $148 Bq \cdot m^{-3}$ (USEPA, 2015) e $200 Bq \cdot m^{-3}$ (CNSC, 2000), sendo ligeiramente inferior para a maioria dos mármore avaliados (em torno de $100 Bq \cdot m^{-3}$).

Para ambos os casos, a radiação de fundo determinada para o detector em mesmas condições, porém em câmara de exalação vazia mostrou uma atividade mínima de $50 \pm 10 Bq \cdot m^{-3}$ para uma densidade de traços de 294 ± 12 traços $\cdot cm^{-2}$ no detector não exposto.

4.3.2 Taxa de exalação

A taxa de exalação superficial e por massa determinadas para os granitos avaliados estão apresentadas na TAB.21.

TABELA 21: Taxa de exalação superficial e por massa para os granitos avaliados.

ID	Localização	Nome Comercial	E_{sup} $Bq \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$	E_m $Bq \cdot kg^{-1} \cdot h^{-1}$
01	Ecoporanga	Arabesco Claro	0,2300 ± 0,0300	0,0150 ± 0,0020
02	Ecoporanga	Santa Helena	0,3850 ± 0,0450	0,0200 ± 0,0025
03	Ecoporanga	Santa Cecília	0,2300 ± 0,0300	0,0150 ± 0,0020
04	Castelo	Cinza Corumbá	0,2300 ± 0,0300	0,0150 ± 0,0020
05	Baixo Guandú	Verde Ubatuba	0,3050 ± 0,0450	0,0100 ± 0,0015
06	Mimoso do Sul	Cinza Andorinha	0,2300 ± 0,0300	0,0100 ± 0,0015
07	Barra de São Francisco	Amarelo Icarai	0,3850 ± 0,0450	0,0050 ± 0,0005
08	Colatina	Preto São Gabriel	0,3050 ± 0,0450	0,0050 ± 0,0010
09	Ecoporanga	Arebesco Marocco	0,3050 ± 0,0450	0,0100 ± 0,0015
10	Águia Branca	Amarelo Ornamental	0,2300 ± 0,0300	0,0150 ± 0,0020
11	Ecoporanga	Giallo Marocco	0,3050 ± 0,0450	0,0050 ± 0,0010
12	Águia Branca	Branco Dallas	0,3050 ± 0,0450	0,0050 ± 0,0010
13	São Domingos do Norte	Branco Siena	0,3050 ± 0,0450	0,0050 ± 0,0010
14	Barra de São Francisco	Fortaleza / Quartzito	0,2300 ± 0,0300	0,0050 ± 0,0005
15	Venda Nova do Imigrante	Cinza Ocre	0,2300 ± 0,0300	0,0050 ± 0,0005
16	Pancas	Branco Vitória	0,2300 ± 0,0300	0,0050 ± 0,0005
17	Barra de São Francisco	Branco Dallas	0,4600 ± 0,0600	0,0150 ± 0,0020
18	Afonso Claudio	Iberê Crema Bordeaux	0,4600 ± 0,0600	0,0450 ± 0,0060
19	Afonso Claudio	Iberê Mombasa	2,7700 ± 0,3450	0,0500 ± 0,0065
20	Afonso Claudio	Iberê Ballagio	0,3450 ± 0,0450	0,0050 ± 0,0005
21	Afonso Claudio	Iberê Prado	1,3300 ± 0,1600	0,0250 ± 0,0035
22	Afonso Claudio	Iberê Vitara	0,1150 ± 0,0100	0,0050 ± 0,0005
23	Barra de São Francisco	New Venatian gold	0,2300 ± 0,0350	0,0150 ± 0,0025
24	Nova Venécia	Branco Primata	0,3450 ± 0,0450	0,0200 ± 0,0030

Os valores determinados apresentam-se aproximadamente iguais, com exceção dos granitos Iberê Mombasa e Iberê Prado que mostraram valores acima de $1 Bq \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$. A taxa de exalação superficial e por massa determinadas para os mármore avaliados estão apresentadas na TAB.22.

TABELA 22: Taxa de exalação superficial e por massa para os mármorees avaliados

ID	Localização	Nome Comercial	E_{sup} $Bq \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$	E_m $Bq \cdot kg^{-1} \cdot h^{-1}$
25	Cachoeiro do Itapemirim	Cintilante	0,1800 ± 0,0200	0,0020 ± 0,0005
26	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Extra	0,3450 ± 0,0450	0,0205 ± 0,0030
27	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Rajado	0,1550 ± 0,0250	0,0100 ± 0,0015
28	Cachoeiro do Itapemirim	Branco Azulado	0,1300 ± 0,0150	0,0075 ± 0,0010
29	Castelo	São Cristovão	0,1400 ± 0,0150	0,0025 ± 0,0005
30	Itaoca	Pinta Verde	0,1200 ± 0,0150	0,0035 ± 0,0005
31	Itaoca	Branco Carrarinha	0,1550 ± 0,0250	0,0015 ± 0,0002

Os valores determinados para os mármorees apresentam-se inferiores aos granitos com exceção do mármore Branco extra que apresentou valor para a taxa de exalação superficial similar às apresentadas pelos granitos (FIG.45).

FIGURA 44: Taxa de exalação superficial para as amostras de granitos e mármorees avaliados.

Em média, observa-se que os valores para a taxa de exalação correspondem entre si e aproximam-se de um valor de $0,38 \pm 0,03 \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$. A FIG.45 mostra os valores para a taxa de exalação por massa de amostra.

FIGURA 45: Taxa de exalação por massa para as amostras de granitos e mármore avaliados.

Para esta avaliação, observa-se a existência de grupos diferenciados de contribuição para a exalação em relação à massa. Uma parcela considerável de granitos apresentou taxas de exalação em relação à massa comparáveis aos mármore.

5 CONCLUSÕES

5.1 Fator de Calibração e Sensibilidade, Medidas de Radônio

O fator de calibração determinado para o Durolon® mostrou um valor de $1,6 \pm 0,10$ traços $\text{cm}^{-2}(\text{kBq m}^{-3}\text{dia})^{-1}$ em relação ao fator de calibração para o CR-39, em literatura de $2,8 \pm 0,20$ $\text{cm}^{-2}(\text{kBq m}^{-3}\text{dia})^{-1}$. Nos testes realizados, as taxas comparativas mostraram uma diferença na detecção de traços em torno de $57,3 \pm 2,0$ % em relação ao CR-39. Os testes realizados mostram que a atividade determinada para ambos é a mesma e que, segundo o índice Z-Score, representam o valor dispensado pela fonte calibrada, tendo visto que todos os valores ficaram entre $-2 \leq Z \leq 2$, considerado satisfatório para o teste.

A caracterização da estrutura do plástico pós-ataque mostrou que existem defeitos na superfície, que, ao microscópio óptico, tendem a se assemelhar a traços e que estes podem ser facilmente eliminados a partir do ajuste de ganho da imagem devido suas características físicas.

A medida dos diâmetros de traços nos detectores irradiado com alfas provenientes do ^{222}Rn e filhos mostraram valores variando entre $25\mu\text{m}$ a $28\mu\text{m}$.

O ensaio de resposta de detecção para o Durolon® provou que, para a densidade de traços em uma área individual observada no microscópio corresponde a densidade de traços esperada fato que, permitiu caracterizar o Durolon® como um detector passivo de traços nucleares, sendo aplicável para este fim. Ressalta-se ainda que, devido à sensibilidade inferior para baixas atividades conclui-se que se deva elevar o tempo de exposição para obter melhores resultados com menor erro associado às medidas e, mostra-se este passível de aplicação para ambientes onde normalmente o CR-39 saturaria.

Em aplicação do Durolon® em câmara selada, a taxa de exalação de radônio medida para os granitos e mármore mostrou-se relativamente baixa, variando de $0,063 \pm 0,003$ $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$ até $26,85 \pm 1,34$ $\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{h}^{-1}$.

5.2 Espectrometria Gama e Índices Radiométricos.

Para aplicações em construção civil, que sugere que o índice de equivalente em rádio não deva exceder o limite de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ do material, os mármore avaliados atingiram o valor máximo de $30\pm 3,0 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ deste índice, enquanto a maioria dos granitos analisados mostraram valores abaixo de $370 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ com exceção aos granitos Cinza corumbá com ($435\pm 4 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$), Iberê Crema Bordeaux com ($390\pm 3 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) e Iberê Mombasa ($700\pm 7 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) sugerindo que tais granitos sejam melhor aplicados na indústria, e na construção de estradas e pontes ou em locais de pouca permanência humana.

Em relação ao índice de exposição gama interno e externo, cujo valor limite não deve superar $1,5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$, os resultados mostram que, para todos os mármore avaliados, o índice não atinge 5% deste valor, sendo que, para os granitos em sua maioria, ambos os índices variam de 40% a 99,9% deste valor, com exceção dos granitos Cinza Corumbá com 25,3% acima para a dose externa e 37,8% para a dose interna com uma taxa de exposição anual de $1,836 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$, Iberê Crema Bordeaux com 5% a mais para a dose externa e 83% a mais para a dose interna com uma taxa de exposição anual $1,578 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ e, para o granito Iberê Mombasa cujos valores chegam a superar 90,2% a dose externa e 221% a dose interna com uma taxa de exposição gama de $2,896 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ e, tais valores sugerem que estes espécimes sejam inadequados à utilização em locais de permanência humana. Os granitos Cinza Andorinha, Amarelo Icarai e Preto São Gabriel mostraram-se em situação limítrofe com a dose máxima de $1,5 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$.

Considerando os índices alfa e gama que propõem um valor associado à exposição do radônio exalado, limitando esta exposição a $200 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para aplicação em matérias de construção (segundo normas Nórdicas) em relação à concentração de ^{226}Ra no material, que limita a estes a uma dose máxima de $1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$, todos os valores determinados para os mármore não atingiram o valor de $0,1 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ mostrando estes na prática isentos de ^{226}Ra e, para os granitos em sua maioria o resultado mostra que a concentração de ^{226}Ra é baixa com exceção do Cinza Corumbá, Cinza Andorinha, Amarelo Icarai, Preto São Gabriel, Cinza Ocre, Iberê Crema Bordeaux, Iberê Mombasa e Iberê Bellagio, cujos índices mostraram uma variação de $1,2 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ a $2,450 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ valores considerados altos para estes

índices sugerindo que tais materiais sejam aplicáveis em materiais superficiais, lajes, telhas e placas sempre em locais de baixa permanência humana.

5.3 Aplicabilidade Conforme Índices Avaliados

A TAB.23 consolida os índices avaliados e o percentual de aplicabilidade em acordo com os índices propostos e os respectivos limites propostos.

TABELA 23: Percentual de aceitabilidade conforme os índices avaliados.

Amostras		Raeq <370 Bq.kg ⁻¹	Hin <1	Hex <1	E <1 mSv.a ⁻¹	Iα <1	Iγ <1mS.a ⁻¹	Aα <200 Bq.m ⁻³	%
Granitos									
01	Arabesco Claro	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
02	Santa Helena	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
03	Santa Cecília	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
04	Cinza Corumbá	✗	✗	✗	✗	✓	✗	✓	29%
05	Verde Ubatuba	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
06	Cinza Andorinha	✓	✗	✓	✗	✓	✗	✓	57%
07	Amarelo Icarai	✓	✗	✓	✗	✓	✗	✗	43%
08	Preto São Gabriel	✓	✗	✓	✗	✓	✗	✓	43%
09	Arabesco Marocco	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
10	Amarelo Ornamental	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
11	Giallo Marocco	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
12	Branco Dallas	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
13	Branco Siena	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
14	Fortaleza / Quartzzo	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
15	Cinza Ocre	✓	✓	✓	✗	✓	✗	✓	71%
16	Branco Vitória	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
17	Branco Dallas	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✗	86%
18	Iberê Crema Bordeaux	✗	✗	✗	✗	✗	✗	✗	0%
19	Iberê Mombasa	✗	✗	✗	✗	✗	✗	✗	0%
20	Iberê Ballagio	✓	✗	✓	✓	✓	✓	✗	71%
21	Iberê Prado	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✗	100%
22	Iberê Vitara	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
23	New Venatian gold	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
24	Branco Primata	✗	✓	✓	✓	✓	✓	✓	86%
Mármoreos									
25	Cintilante	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
26	Branco Extra	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✗	86%
27	Branco Rajado	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
28	Branco Azulado	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
29	São Cristovão	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
30	Pinta Verde	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%
31	Branco Carrarinha	✓	✓	✓	✓	✓	✓	✓	100%

* Valores em negrito apresentam percentual de aceitabilidade abaixo de 70%.

Por fim, se considerado como satisfatório a avaliação de aplicabilidade superior a 70%, todos os todos os mármore mostraram-se satisfatórios frente aos índices avaliados; Para os granitos, a maioria apresenta aplicabilidade superior a 70% exceto os granitos Cinza Corumbá, Cinza Andorinha, Amarelo Icaraí, Preto São Gabriel, Iberê Crema Bordeaux e Iberê Mombasa que encontram aplicações sugeridas para locais ventilados e de baixa permanência humana não sendo recomendados para interiores de residências.

Frente à exalação medida, todos os espécimes avaliados mostram baixa taxa de exalação de radônio provavelmente devida às condições de porosidade destes materiais ou mesmo a ausência de concentrações mais elevadas destes radionuclídeos primordiais.

6 SUGESTÕES PARA NOVOS TRABALHOS

- Realizar uma estimativa da dose anual devida à exalação do radônio em ambientes residenciais em que granitos ou mármore estejam instalados.
- Ampliar as amostras para novas lavras em atividade que não foram contempladas no presente trabalho.
- Aprimorar o desenvolvimento do Durolon® caracterizando a relação traço energia alfa para diferentes radionuclídeos.
- Realizar novas comparações entre laboratórios e aprimorar o fator de calibração para o Durolon®.
- Realizar a determinação dos minerais contidos nos granitos e mármore e estabelecer uma correlação destes com o fator de correção de atenuação.
- Desenvolver um projeto aberto e cooperativo para um sistema autônomo de contagem de traços que tenha por finalidade principal ser eficiente com baixo custo.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- ADEL G.E.A., UOSIF M.A.M., EL-TAHER A., Natural radioactivity and dose assessment for phosphate rocks from Wadi El-Mashash and El-Mahamid Mines, Egypt, *Journal of Environmental Radioactivity* 84, 2005.
- ADEMOLA A.K., HAMMED O.S., ADEJUMOBI C.A., Radioactivity and dose assessment of marble samples from Igbeji Mines, Nigeria, *Radiat. Prot. Dosim.* **132** (1), pp. 94–97, 2008.
- AHMAD, M.N., HUSSEIN, A.J.A., Natural radioactivity in Jordanian building materials and the associated radiation hazards. *J. Environ. Radioact.* 39, 9–22, 1997.
- ALBARÈDE, F.: **Geoquímica uma introdução**, São Paulo, Oficina de Textos, 2011.
- ALTMAN, E. I. Financial ratios, discriminant analysis and the prediction of corporate bankruptcy. **The journal of finance**, v. 23, n. 4, p. 589-609, 1968.
- AMRANI D., TAHTAT M., Natural radioactivity in Algerian building materials. *Appl. Radiat. Isot.* 54, 687–689, 2001.
- ANJOS, R. M., VEIGA, R., SOARES, T., SANTOS, A. M. A., AGUIAR, J. G., FRASCÁ, M. H. B. O., MOSQUERA, B., CARVALHO, C., GOMES, P. Natural radionuclide distribution in Brazilian commercial granites. *Radiation Measurements*, 39(3), 245-253, 2005.
- AQUINO, R. R. **Avaliação da radioatividade natural em areias das praias da Grande Vitória, Espírito Santo**. 2010. Dissertação de Mestrado. Universidade de São Paulo.
- AQUINO, R. R. e PECEQUILO B. R. S. Natural occurring radionuclides in novel sand beaches from Espírito Santo State. In: X Congresso Regional Latinoamericano IRPA de Protección y Seguridad Radiológica, Buenos Aires, Argentina, 2015.
- AQUINO, R. R. e PECEQUILO B. R. S. Natural Radioactivity Content and Dose Assessment in a Black Spot Sand Non-Studied New location in Espírito Santo State, Brazil. In: 12th International Symposium on Radiation Physics, 2012, Rio de Janeiro. 12th International Symposium on Radiation Physics, 2012.
- AQUINO, R. R., CAVALCANTE, F., PECEQUILO, B.R.S. Iron influence in self-attenuation of gamma radiation in sand samples. In: International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2013, 2013, Recife - PE. International Nuclear Atlantic Conference, 2013.
- AQUINO, R. R., FERREIRA, A. O., PECEQUILO B. R. S. Estudos Preliminares do Uso de um Plástico Comercial Brasileiro como Detector de Traços Nucleares Para Partículas Alfa.. In: Latin American Symposium on Radon And II Symposium on Radon in Brazil, 2014, Poços de Caldas, v. 1. p. 25, 2014.

AQUINO¹, R. R. e PECEQUILO B.R.S., ²²⁶Ra, ²³²Th and ⁴⁰K Activities in Commercial Granites Samples From Espírito Santo State, Brazil: Preliminary Results, In: 2011 INTERNATIONAL CONFERENCE ON RADIOECOLOGY & ENVIRONMENTAL RADIOACTIVITY – ICRER 2011, 2011, Hamilton, Canada, **Anais...ICRER2011**

AQUINO², R. R. e PECEQUILO B. R. S. Natural Radioactivity Analysis in Commercial Marble Samples of Southest Region in Espírito Santo State: Preliminary Results.. In: International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011, 2011, Belo Horizonte - MG. International Nuclear Atlantic Conference, 2011.

BARROS, L. F., PECEQUILO, B. R. S. Self-attenuation factors in gamma-ray spectrometry of select sand samples from Camburi Beach, Vitória, Espírito Santo, Brazil. **Radiation Physics and Chemistry**, v. 95, p. 339-341, 2014.

BARROS, L.F., PECEQUILO, B.R.S., AQUINO, R.R. Gamma radiation measurement in select sand samples from Camburi beach-Vitoria, Espirito Santo, Brazil: preliminary results. 2011.

BERETKA, J. e MATHEW, P. J. **Natural Radioactivity of Australian Building Materials, Industrial Wastes and By-products. Health Physics.** v. 48(1), p.87-95, 1985.

BITELLI, Thomaz. Física e dosimetria das radiações. **São Paulo: Atheneu**, 2006.

BOU-RABEE, F., BEM, H., Natural radioactivity in building materials utilized in the state of Kuwait. J. Radioanal. Nucl. Chem. 213 (2), 143–149, 1996.

BURKE, A. K. M. J., Estudo da emissão de Rn-222 em amostras de concreto com composições diferentes, **Tese de Mestrado**, UNICAMP, Faculdade de Engenharia Civil, 2002.

BUSSAB, W.O., MORETTIN, P. A. **Estatística básica**. Saraiva, 2010.

CEVIK, U., DAMLA N., KOBAYASHI A.I., CELIK A., KARA A., Radiation dose estimation and mass attenuation coefficients of marble used in Turkey, Annals of Nuclear Energy, Volume 37, Issue 12, December, 2010.

CHIODI FILHO, C., DE PAULA RODRIGUES, E. ARTUR, A. C. Panorama técnico-econômico do setor de rochas ornamentais no Brasil. **Geociências, São Paulo**, v. 23, n. 1-2, p. 5-20, 2004.

CHIODI FILHO, Cid. Situação e Perspectivas Brasileira no Setor de Rochas Ornamentais e de Revestimento. **I Simpósio Brasileiro de Rochas Ornamentais II Seminário de Rochas Ornamentais do Nordeste**, p. 2, 2001.

CNSC, CANADIAN NUCLEAR SAFETY COMMISSION, Radiation Protection Regulations SOR/2000-203. **Ottawa, ON. Retrieved from laws-lois. justice. gc. ca/eng/regulations/sor-2000-203/page-4. html# docCont**, 2000.

DA SILVA, C.M., SOUZA, G.H., DOS SANTOS AMARAL, R. Determinação da concentração de urânio em poços de abastecimento público da região urano-fosfática de Pernambuco. **Physicae**, v. 3, n. 3, p. 58-62, 2003.

DO ESPÍRITO SANTO, Rochas Ornamentais. RIGS. **Gestão e Cultura no Espírito Santo**, p. 67, 2012.

EC (European Commission), Commission recommendation 90/143/Euratom of 21 February 1990 on the protection of the public against indoor exposure to radon. Official Journal L-80 of 27/03/90. European Commission, Brussels, 1990.

EC (European Commission), Radiation Protection, 112-radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials. Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection, 1999.

EISENBUD, M. **Environmental radioactivity**, 2nd ed. Academic Press, Orlando, 1987.

EVANS, R. D.; NOYAU, A. **The atomic nucleus**. New York: McGraw-Hill, 1972.

FAHEEM, M. M. Radon exhalation and its dependence on moisture content from samples of soil and building materials, **Radiation Measurements**, Short communication, 2008.

FERREIRA, A. O. **Avaliação da radioatividade natural em algumas rochas graníticas do estado do Paraná e sua utilização na construção civil**. 2013. Tese de Doutorado. Universidade de São Paulo.

FERREIRA, A.O., PECEQUILO, B.R.S., AQUINO, R.R. Application of a Sealed Can Technique and CR-39 detectors for measuring radon emanation from undamaged granitic ornamental building materials. Radioprotection (Paris. 1966), v. 46, p. S49-S54, 2011.

FLEISCHER, R.L., PRICE, P.B., WALKER, R.M. **Nuclear Tracks in Solids: Principles and Applications**. Univ. of California Press, Berkeley, 1975

GAZETA DO NORTE. **Oito prefeitos nesta terça-feira (28/04) na Comissão do Granito e Rochas Ornamentais**. . Vitória, 28 de Abril de 2015. Disponível em: <<http://gazetadonorte.com.br>>. Acesso em: 28/04/2015

GAZETAONLINE. **Exportação de rochas cresce mais de 25 % no ES, aponta órgão**. Vitória, 23 Setembro 2013. Disponível em: <<http://www.gazetaonline.com.br>>. Acesso em: 1/07/2015

GB6566-2001, Standard of People Republic of China: Limit of Radionuclides in Building Materials. Chinese Standard Press, 2001.

HASSAN N.M. , ISHIKAWA T., HOSODA M., SORIMACHI A., TOKONAMI S., FUKUSHI M. e SAHOO S.K., Assessment of the natural radioactivity using two techniques for the measurement of radionuclide concentration in building materials used in Japan, **J Radioanal Nucl Chem** , v. 283 p. 15–21, 2010.

HORCAS, I.F.R., GOMEZ-RODRIGUEZ, J.M., COLCHERO, J., GOMEZ-HERRERO, J., BARO, A.M., Review of Scientific Instruments 78, 013705, 2007.

IAEA-TECDOC-1363 Guidelines for Radioelement Mapping Using Gamma Ray Spectrometry Data IAEA, Vienna, Austria, 2003.

IBGE, INSTITUTO BRASILEIRO DE GEOGRAFIA E ESTATÍSTICA. Disponível em:<<http://www.ibge.gov.br>>. Acesso em: 08 de Julho de 2015.

ICRP, 1977, International Commission on Radiological Protection, Recommendation of ICRP, publicação 26, Ed. Pergamon Press, Oxford, 1977.

ICRP, 1994. International Commission on Radiological Protection, Protection Against Radon-222 at Home and at Work (ICRP Publication 65), Annals of the ICRP v.23(2), Pergamon Press, Oxford.

ICRP, 2014. Radiological Protection against Radon Exposure. ICRP Publication 126. Ann. ICRP 43(3).

IEMA, INSTITUTO ESTADUAL DE MEIO AMBIENTE E RECURSOS HIDRICOS. Disponível em:<<http://www.meioambiente.es.gov.br>>. Acesso em: 08 de julho de 2015.

IJSN. INSTITUTO JONES DOS SANTOS NEVES. Disponível em: <http://ijsn.es.gov.br>. Acesso em: 08 de Julho de 2015.

JANERT, P. K. **Gnuplot in action, Second Edition MEAP**. Manning, 2010.

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

KRIEGER R., Radioactivity of Contruction Materials, **Betonwerk Fertigteil Techn**, v. 47, p.468-473, 1981.

LANCASTER, H. O. **Chi-Square Distribution**. John Wiley & Sons, Inc., 1969.

LU X., Radiometric analysis and radiological hazards of Chines commercial marble, *Radiat. Eff. Defects Solids* **162** (6), pp. 455–462, 2007.

MACHADO, F.B., MOREIRA, C.A., ZANARDO, A., ANDRE, A.C., GODOY, A.M., FERREIRA, J. A., GALEMBECK, T., NARDY, A.J.R., ARTUR, A.C., OLIVEIRA, M.A.F.de. **Enciclopédia Multimídia de Minerais.[on-line].** ISBN: 85-89082-11-3 Disponível em:<<http://www.rc.unesp.br/museudpm>>. Acesso em: 1 de julho de 2015.

MAHUR, A. K., KUMAR, R., SONKAWADE, R. G., SENGUPTA, D., & PRASAD, R., Measurement of natural radioactivity and radon exhalation rate from rock samples of Jaduguda uranium mines and its radiological implications. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms**, v. 266, n. 8, p. 1591-1597, 2008.

MEDHAT, M. E. Assessment of radiation hazards due to natural radioactivity in some building materials used in Egyptian dwellings. **Radiation protection dosimetry**, p. ncp032, 2009.

MICHAEL F., PARPOTTAS Y., TSERTOS H. Gamma radiation measurements and dose rates in commonly used building materials in Cyprus, *Radiat. Prot. Dosim* **142**, Vol.No. 2–4, pp. 282–291, 2010.

MOURA, C. L., Radioatividade natural e emissão de Rn-222 em rochas ornamentais provenientes de diferentes series magmaticas, **Tese de Doutorado**, UNESP Rio Claro, Pós-Graduação em Geologia Regional, 2005.

MURPHY, KATE. What's lurking in your countertop. **The New York Times. Published: July**, v. 24, 2008.

NCRP-97, National Council on Radiation Protection and Measurements, Measurement of radon and radon daughter in air, NCRP-97, 1998.

NEMAN, Rodrigo Silvestre. **Medida separada de Radônio-222 e de seus filhos no ar: monitoração na cidade de Poços de Caldas-MG e comparação de atividades envolvendo 2 outras técnicas de medida de Rn-222 no ar.** 2004. Tese de Doutorado. Universidade Estadual de Campinas (UNICAMP). Instituto de Física Gleb Wataghin.

NGACHIN M., GARAVAGLIA M., GIOVANI C., KWATO NJOCK M.G., NOURREDDINE A., Assessment of natural radioactivity and associated radiation hazards in some Cameroonian building materials, *Radiation Measurements*, Volume 42, Issue 1, January, Pages 61-67, 2007.

NNDC, National Nuclear Data Center, **Brookhaven National Laboratory**, base em ENSDF, Nuclear Wallet Cards (1996-2003). Disponível em: <<http://www.nndc.jbl.gov>>. Acesso em: 10 de Agosto de 2015.

NORDIC, Naturally occurring Radiation in Nordic Countries—Recommendation. In: The Flag-Book series, The Radiation Protection Authorities in Denmark, Finland, Norway and Sweden, Reykjaví, 2000.

NOUR K., Measurement of natural radioactivity in building materials in Qena city, Upper Egypt, *Journal of Environmental Radioactivity*, Volume 83, Issue 1, Pages 91-99, 2005.

OECD, 1979. Organization for Economic Cooperation and Development. Exposure to radiation from natural radioactivity in building materials. Report by a Group of Experts of the OECD Nuclear Energy Agency, OECD, Paris, 1979.

ORTEC, InterWinnerTM6.0 MCA Emulation, Data Acquisition, and Analysis Software For Gama and Alfa Spectroscopy, TOMCOM Software Ltd., 2004.

PAKOU, A.A., ASSIMAKOPOULOS, P.A., PRAPIDIS, M., Natural radioactivity and radon emanation factors in building material used in Epirus (north-western Greece), **The Science of the Total Environment**, v.144, p.255-260, 1994.

PAVLIDOU, S., KORONEOS, A., PAPASTEFANOU, C., CHRISTOFIDES, G., STOULOS, S., VAVELIDES, M., Natural radioactivity of granites used as building materials, **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 89, p. 48-60, 2006.

PUGLIESI, Fabio. **Caracterização do polímero Durolon como detector de traços nucleares de estado sólido**. 2008. Tese de Doutorado. Universidade de São Paulo.

PYLON - Pylon Electronics Incorporation, Pylon model RN-1025, Instruction Manual, 1992.

RAVISANKAR, R., VANASUNDARI, K., CHANDRASEKARAN, A., RAJALAKSHMI, A., SUGANYA, M., VIJAYAGOPAL, P., & MEENAKSHISUNDARAM, V Measurement of natural radioactivity in building materials of Namakkal, Tamil Nadu, India using gamma-ray spectrometry. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 70, n. 4, p. 699-704, 2012.

RIEDEL, W., EISENMENGER, A Problems in monitoring for thorium intakes by workers. *Kerntechnik*, v. 64, n. 1-2, p. 72-85, 1999.

RIGHI S., BRUZZI L., Natural radioactivity and radon exhalation in building materials used in Italian dwellings, *Journal of Environmental Radioactivity*, Volume 88, Issue 2, , Pages 158-170, 2006.

RIGHI, S., BRUZZI, L., Natural radioactivity and radon exhalation in building materials used in Italian dwellings, **Journal of Environmental Radioactivity**, v.88, p.158-170, 2006.

SAAS, Staatliches Amt Für Atomsicherheit Und Strahlenschutz, (SAAS-250), Berlin, p.205, (1979)

Safety Reports Series 33, Radiation Protection against Radon in Workplaces other than Mines, (2003).

SAHOO B.K., NATHWANI D., EAPPEN K.P., RAMACHANDRAN T.V., GAWARE J.J., MAYYA Y.S., Estimation of radon emanation factor in Indian building materials, *Radiation Measurements* 42 1422 – 1425, 2007.

SALAS, Humberto Terrazas; NALINI JR, Hermínio Arias; MENDES, Júlio César. Ocorrência de Minerais Radioativos em Rochas Graníticas Ornamentais. In: **Annals of the VI INAC—International Nuclear Atlantic Conference, Rio de Janeiro**. 2002.

SHAKHASHIRO, A. et al. **Report on the IAEA-CU-2006-08 proficiency test on the determination of gamma emitting radionuclides in sea water**. International Atomic Energy Agency, Department of Nuclear Sciences and Applications, Physics, Chemistry and Instrumentation Laboratory, Chemistry Unit, Seibersdorf (Austria), 2007.

SOWMYA M., SENTHILKUMAR B., SESHAN B. R. R., HARIHARAN G., PURVAJA R. , RAMKUMAR S. e RAMESH R., Some natural radioactivity and associated dose rates in soil samples from Kalpakkam, South India. **Radiation Protection Dosimetry**, v.141, 239-247, 2010.

SPÍNOLA, V. **Potencial Exportador e Política Pública para uma Evolução Virtuosa: a Indústria de Rochas Ornamentais da Bahia**. 2002. Tese de Doutorado. Dissertação.(Mestrado em Economia). Universidade Federal da Bahia–UFBA, Salvador.

SPÍNOLA, V. GUERREIRO, Luis Fernando; BAZAN, Rafaela. A indústria de rochas ornamentais. **Salvador: Desenbahia**, 2004.

STEINHÄUSLER F., HOFMANN W. e LETTNER H., Thoron exposure of man: Negligible issue?, **Radiation Protection Dosimetry**, v.56, 127-131, 1994.

STOULOS, S., MANOLOPOULOU, M., PAPASTEFANOU, C., Assessment of natural radiation exposure and radon exhalation from building materials in Greece. J. **Environment Radioactivity**, v.69, 225–240, 2003.

STRANDEN, E., Health Physics 8, 167–177. (1976).

TUFAIL, M., MIRZA, S. M., Mahmood Arif , QURESHI, A. A.,YASIR ARFAT, KHAN, H. A., Application of a `closed-cana technique for measuring radon exhalation from mine samples of Punjab, Pakistan, **Journal of Environmental Radioactivity**, v.50, p. 267-275, 2000.

TYKVA, R, SABOL, J. **Low-level environmental radioactivity: sources and evaluation**. CRC Press, 1995.

UNSCEAR, UNITED NATIONS. SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Sources and effects of ionizing radiation: sources**. United Nations Publications, New York, 1983.

UNSCEAR, UNITED NATIONS. SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Sources and effects of ionizing radiation: sources**. United Nations Publications, New York, 1988.

UNSCEAR, UNITED NATIONS. SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Sources and effects of ionizing radiation: sources.** United Nations Publications, New York, 2000.

USEPA. UNITED STATES ENVIRONMENT PROTECTION AGENCY. Radiation Protection. Disponível em: < <http://www.epa.gov/radiation/radionuclides/radon.html>>. Acesso em: 01 de julho de 2015.

VARGAS, T., MOTOKI, A., PEIXOTO, J. L. N. Rochas ornamentais do Brasil, seu modo de ocorrência geológica, variedade tipológica, exploração comercial e utilidades como materiais nobres de construção. **Revista de Geociências**, v. 2, n. 2, p. 119-132, 2001.

VENTURINI L. e NISTI M.B., Correção de auto-absorção na espectrometria gama de amostras ambientais, **IV ENAN**, 1997

VILALOBOS, APO. **Medida do coeficiente de difusão do Rn-222 através de tintas usadas na construção civil.** 1991. Tese de Doutorado. Tese (Doutorado) IFWG, UNICAMP, Campinas.

WERNICK, E: Rochas magmáticas: Conceitos fundamentais e classificação modal, química, termodinâmica e tectônica. **São Paulo: Ed. UNESP, 2004.**

WHO International Radon Project, **Report of the 3rd meeting**, Munich, march, 2007.

XINWEI L. e XIAOLAN Z., Radionuclide Content and Associated Radiations Hazards of Building Materials and By-Products in Baoji, West China, **Radiation Protection Dosimetry**, v.128, p.471-476, 2007.

YA-XIN Y., XIN-MIN W., ZHONG-YING J., WEI-XING W., JI-GEN L., JUN L., LEI-MING W., YUAN-FU H., Radioactivity concentrations in soils of the Xiazhuang granite area, China, *Applied Radiation and Isotopes*, Volume 63, Issue 2, , Pages 255-259, August, 2005.

APENDICE A – MOSAICOS DAS AMOSTRAS DE MÁRMORES E GRANITOS

Amostras sinalizadas com o ID (TAB.1)

Granitos

Mármores

APENDICE B – CURVAS E FUNÇÕES DE ATENUAÇÃO GAMA

APENDICE C – CÓDIGOS FONTE GNUPlot 5.1

Os códigos fontes a seguir foram desenvolvidos com o uso do GNUPlot 5.1 disponível em: <http://gnuplot.sourceforge.net>

```
#####
#
#      Autor : Reginaldo Ribeiro de Aquino
#      Programa : Plota curvas de atenuação em perspectiva 3D considerando a função: f(E, d, %)
#      Ver.GNUP : 5.1
#
#####
#
#  Configurações de apresentação
set title "Variação percentual da atenuação gama pela densidade aparente"
set xlabel "Densidade aparente [g/cm³]" rotate
set ylabel "Energia [keV]" rotate
set zlabel "Percentual Atenuação [%]" rotate
set title font ",15" norotate
set view 58, 30, 1, 1
#
#  Seleciona a perspectiva
set palette rgbformulae 8, 9, 7
set style fill transparent solid 0.30 border
set pm3d depthorder border linecolor rgb "#a0a0f0" linewidth 0.5
#
#  Seleciona Pallet
set pm3d
set palette rgb 33,13,10
#
#  Ajustes apresentação
set contour base
set hidden3d
set grid nopolar
#
#  Plota função paramétrica
set parametric
splot [u=0:60][v=230:1600] \
, 1.5656, v, (u<0.5) ? -1 : -8.035*log(v)+63.078 notitle \
, 1.546, v, (u<0.5) ? -1 : -11.86*log(v)+90.349 notitle \
, 1.7693, v, (u<0.5) ? -1 : -16.95*log(v)+130.31 notitle \
, 1.7434, v, (u<0.5) ? -1 : -19.48*log(v)+146.05 notitle \
, 1.9008, v, (u<0.5) ? -1 : -19.44*log(v)+146.12 notitle \
, 1.6978, v, (u<0.5) ? -1 : -15.03*log(v)+114.77 notitle \
, 1.79, v, (u<0.5) ? -1 : -11.79*log(v)+93.026 notitle \
, 1.6695, v, (u<0.5) ? -1 : -8.128*log(v)+65.371 notitle \
, 1.5879, v, (u<0.5) ? -1 : -7.881*log(v)+62.923 notitle \
, 1.823, v, (u<0.5) ? -1 : -15.69*log(v)+120.95 notitle \
, 1.8271, v, (u<0.5) ? -1 : -13.21*log(v)+104.1 notitle \
, 1.7582, v, (u<0.5) ? -1 : -11.1*log(v)+87.704 notitle \
, 1.6371, v, (u<0.5) ? -1 : -10.27*log(v)+79.802 notitle \
, 1.7182, v, (u<0.5) ? -1 : -16.3*log(v)+124.99 notitle \
, 1.7616, v, (u<0.5) ? -1 : -13.52*log(v)+103.43 notitle \
, 1.788, v, (u<0.5) ? -1 : -9.43*log(v)+75.333 notitle \
, 1.8441, v, (u<0.5) ? -1 : -13.84*log(v)+107.67 notitle \
, 1.894, v, (u<0.5) ? -1 : -11.74*log(v)+95.653 notitle \
, 1.794, v, (u<0.5) ? -1 : -9.888*log(v)+79.093 notitle \
, 1.623, v, (u<0.5) ? -1 : -8.031*log(v)+64.648 notitle \
, 1.905, v, (u<0.5) ? -1 : -11.31*log(v)+90.581 notitle \
, 1.9091, v, (u<0.5) ? -1 : -40.79*log(v)+299.85 notitle \
, 1.848, v, (u<0.5) ? -1 : -11.2*log(v)+89.922 notitle \
, 1.8092, v, (u<0.5) ? -1 : -22.93*log(v)+172.76 notitle \
, 2.1039, v, (u<0.5) ? -1 : -13.78*log(v)+111.46 notitle \
, 1.8347, v, (u<0.5) ? -1 : -11.15*log(v)+88.529 notitle \
, 1.8494, v, (u<0.5) ? -1 : -9.606*log(v)+79.088 notitle \
, 1.8587, v, (u<0.5) ? -1 : -10.01*log(v)+81.23 notitle \
, 1.9438, v, (u<0.5) ? -1 : -10.63*log(v)+86.144 notitle \
, 1.987, v, (u<0.5) ? -1 : -11.92*log(v)+95.637 notitle
#
#  Fim.
#
```

```
#####
#      Autor : Reginaldo Ribeiro de Aquino
#      Programa : Plota curvas 2d sobrepostas
#      Ver.GNUP : 5.1
#
#####
#
#  Ajustes apresentação
set title "Atenuação Gama Para as Amostras de Granitos e Mármorees"
set xlabel "Energia [keV]"
set ylabel "Percentual Atenuação [%]"
set title font ",15" norotate
set grid nopolar
#
#  Plota funções
set multiplot
plot [200:1600] \
  -8.035*log(x)+63.078 with lines title "Arabesco Claro" \
  , -11.86*log(x)+90.349 with lines title "Santa Helena" \
  , -16.95*log(x)+130.31 with lines title "Santa Cecília" \
  , -19.48*log(x)+146.05 with lines title "Cinza Corumbá" \
  , -19.44*log(x)+146.12 with lines title "Verde Ubatuba" \
  , -15.03*log(x)+114.77 with lines title "Cinza Andorinha" \
  , -11.79*log(x)+93.026 with lines title "Amarelo Icarai" \
  , -8.128*log(x)+65.371 with lines title "Preto São Gabriel" \
  , -7.881*log(x)+62.923 with lines title "Arabesco Marocco" \
  , -15.69*log(x)+120.95 with lines title "Amarelo Ornamental" \
  , -13.21*log(x)+104.1 with lines title "Giallo Marocco" \
  , -11.1*log(x)+87.704 with lines title "Branco Dallas" \
  , -10.27*log(x)+79.802 with lines title "Branco Siena" \
  , -16.3*log(x)+124.99 with lines title "Fortaleza Quartzo" \
  , -13.52*log(x)+103.43 with lines title "Cinza Ocre" \
  , -9.43*log(x)+75.333 with lines title "Branco Vitória" \
  , -13.84*log(x)+107.67 with lines title "Branco Dallas" \
  , -11.74*log(x)+95.653 with lines title "Iberê Crema Bordeaux" \
  , -9.888*log(x)+79.093 with lines title "Iberê Mombasa" \
  , -8.031*log(x)+64.648 with lines title "Iberê Ballagio" \
  , -11.31*log(x)+90.581 with lines title "Iberê Prado" \
  , -40.79*log(x)+299.85 with lines title "Iberê Vitara" \
  , -11.2*log(x)+89.922 with lines title "New Venatian gold" \
  , -22.93*log(x)+172.76 with lines title "Branco Primata" \
  , -13.78*log(x)+111.46 with lines title "Cintilante" \
  , -11.15*log(x)+88.529 with lines title "Branco Extra" \
  , -9.606*log(x)+79.088 with lines title "Branco Rajado" \
  , -10.01*log(x)+81.23 with lines title "Branco Azulado" \
  , -10.63*log(x)+86.144 with lines title "São Cristovão" \
  , -11.92*log(x)+95.637 with lines title "Pinta Verde"
,
#
#  Fim.
#

#####
#      Autor : Reginaldo Ribeiro de Aquino
#      Programa : Plota curvas interpoladas com pontos experimentais e erros.
#      Ver.GNUP : 5.1
#
#####
#
#  Ajustes apresentação
unset colorbox
set xlabel "Energia [keV]"
set ylabel "Percentual de atenuação [%]"
set grid nopolar
#
#  Plota funções interpolando
set samples 300
set multiplot layout 2,2
set bars large 0.8
set title 'Amostra: 01-Arabesco Claro '; plot [100:1600][0:80] '01.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 \
pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -8.035*log(x)+63.078 lt 5 lc 7 notitle
set title 'Amostra: 02-Santa Helena '; plot [100:1600][0:80] '02.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt \
5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.86*log(x)+90.349 lt 5 lc 7 notitle
set title 'Amostra: 03-Santa Cecília '; plot [100:1600][0:80] '03.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 \ pt
5 ps 0.4 notitle w yerr, -16.95*log(x)+130.31 lt 5 lc 7 notitle
set title 'Amostra: 04-Cinza Corumbá'; plot [100:1600][0:80] '04.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt \
5 ps 0.4 notitle w yerr, -19.48*log(x)+146.05 lt 5 lc 7 notitle
```



```

# set title 'Amostra: 05-Verde Ubatuba'; plot [100:1600][0:80] '05.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -19.44*log(x)+146.12 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 06-Cinza Andorinha'; plot [100:1600][0:80] '06.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -15.03*log(x)+114.77 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 07-Amarelo Icarai'; plot [100:1600][0:80] '07.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.79*log(x)+93.026 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 08-Preto São Gabriel'; plot [100:1600][0:80] '08.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -
# 5 pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -8.128*log(x)+65.371 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 09-Arebesco Marocco'; plot [100:1600][0:80] '09.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -7.881*log(x)+62.923 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 10-Amarelo Ornamental'; plot [100:1600][0:80] '10.dat' u 1:2:3 lt -1 pi
# -5 pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -15.69*log(x)+120.95 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 11-Giallo Marocco'; plot [100:1600][0:80] '11.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -13.21*log(x)+104.1 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 12-Branco Dallas'; plot [100:1600][0:80] '12.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.1*log(x)+87.704 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 13-Branco Siena'; plot [100:1600][0:80] '13.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -10.27*log(x)+79.802 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 14-Fortaleza / Quartzzo'; plot [100:1600][0:80] '14.dat' u 1:2:3 lt -1 pi
# -5 pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -16.3*log(x)+124.99 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 15-Cinza Ocre'; plot [100:1600][0:80] '15.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt 5
# ps 0.4 notitle w yerr, -13.52*log(x)+103.43 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 16-Branco Vitória'; plot [100:1600][0:80] '16.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -9.43*log(x)+75.333 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 17-Branco Dallas'; plot [100:1600][0:80] '17.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -13.84*log(x)+107.67 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 18-Iberê Crema Bordeaux'; plot [100:1600][0:80] '18.dat' u 1:2:3 lt -1
pi # -5 pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.74*log(x)+95.653 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 19-Iberê Mombasa'; plot [100:1600][0:80] '19.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 #
pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -9.888*log(x)+79.093 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 20-Iberê Ballagio'; plot [100:1600][0:80] '20.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -8.031*log(x)+64.648 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 21-Iberê Prado'; plot [100:1600][0:80] '21.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt 5
# ps 0.4 notitle w yerr, -11.31*log(x)+90.581 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 22-Iberê Vitara '; plot [100:1600][0:80] '22.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -40.79*log(x)+299.85 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 23-New Venatian gold'; plot [100:1600][0:80] '23.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -
# 5 pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.2*log(x)+89.922 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 24-Branco Primata'; plot [100:1600][0:80] '24.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -22.93*log(x)+172.76 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 25-Cintilante'; plot [100:1600][0:80] '25.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt 5
# ps 0.4 notitle w yerr, -13.78*log(x)+111.46 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 26-Branco Extra'; plot [100:1600][0:80] '26.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.15*log(x)+88.529 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 27-Branco Rajado'; plot [100:1600][0:80] '27.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -9.606*log(x)+79.088 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 28-Branco Azulado'; plot [100:1600][0:80] '28.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5
# pt 5 ps 0.4 notitle w yerr, -10.01*log(x)+81.23 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 29-São Cristovão'; plot [100:1600][0:80] '29.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -10.63*log(x)+86.144 lt 5 lc 7 notitle
# set title 'Amostra: 30-Pinta Verde '; plot [100:1600][0:80] '30.dat' u 1:2:3 lt -1 pi -5 pt
# 5 ps 0.4 notitle w yerr, -11.92*log(x)+95.637 lt 5 lc 7 notitle
#
# Fim.
#

```