



INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

Avaliação da concentração de atividade de radionuclídeos naturais e caracterização química elementar das águas minerais da cidade de Caxambu, MG

ARTHUR ATHAYDE MENEZHINI

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

Profa. Dra. Sandra Regina Damatto

São Paulo

2019

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES

Autarquia associada à Universidade de São Paulo

Avaliação da concentração de atividade de radionuclídeos naturais e caracterização química elementar das águas minerais da cidade de Caxambu, MG

Versão corrigida

ARTHUR ATHAYDE MENEHINI

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

Profa. Dra. Sandra Regina Damatto

São Paulo

2019

Fonte de Financiamento: CNEN

Autorizo a reprodução e divulgação total ou parcial deste trabalho, para fins de estudo e pesquisa, desde que citada a fonte

Como citar:

ATHAYDE MENEZHINI, A. ***Avaliação da concentração de atividade de radionuclídeos naturais e caracterização química elementar das águas minerais da cidade de Caxambu, MG.*** 2019. 75 p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, IPEN-CNEN/SP, São Paulo. Disponível em: <www.teses.usp.br> (data de consulta no formato: dd/mm/aaaa)

Ficha catalográfica elaborada pelo Sistema de geração automática da Biblioteca IPEN/USP, com os dados fornecidos pelo(a) autor(a)

Athayde Meneghini, Arthur
Avaliação da concentração de atividade de radionuclídeos naturais e caracterização química elementar das águas minerais da cidade de Caxambu, MG / Arthur Athayde Meneghini; orientadora Sandra Regina Damatto. -- São Paulo, 2019.
75 p.

Dissertação (Mestrado) - Programa de Pós-Graduação em Tecnologia Nuclear (Aplicações) -- Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 2019.

1. Água Mineral. 2. Radionuclídeos Naturais. 3. Caxambu. 4. Dose efetiva comprometida. 5. Caracterização química elementar. I. Regina Damatto, Sandra, orient. II. Título.

FOLHA DE APROVAÇÃO

Autor: Arthur Athayde Meneghini

Título: Avaliação da concentração de atividade de radionuclídeos naturais e caracterização química elementar das águas minerais da cidade de Caxambu, MG

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

Data: 24/01/2019

Banca Examinadora

Profa. Dra.: Sandra Regina Damatto

Intituição: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares Julgamento:

Prof. Dr.:

Intituição: Julgamento:

Prof. Dr.:

Intituição: Julgamento:

À minha mãe, vó, irmãs e sobrinha, que por todos os momentos me trouxeram amor e estiveram ao meu lado.

AGRADECIMENTOS

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares e a Comissão Nacional de Energia Nuclear, pelo apoio acadêmico e financeiro.

À minha orientadora, Dra. Sandra Regina Damatto, que desde minha Iniciação Científica me incentivou a ingressar no mestrado; agradeço por toda dedicação, conselhos, amizade e todo o apoio comigo e com esse trabalho.

À minha mãe Rosa, que em todas as ocasiões sempre nos manteve unidos e fez de tudo para realizarmos nossos sonhos, tenha certeza que todas as minhas conquistas são suas.

À minha vó Iolanda, que com todo seu carinho e apoio, sempre cuidou de nós e continua a nos condecorar com sua alegria e amor.

Às minhas irmãs Samira e Amanda, que desde muito cedo tomaram conta de mim e me ensinaram as coisas mais importantes da vida, principalmente os significados de família e empatia.

À Dra. Bárbara Paci Mazzilli pela oportunidade de realizar esse trabalho no Laboratório de Radiometria Ambiental e pelo apoio à pesquisa.

À Laís Ladeia, que me acompanhou e me fortaleceu em toda trajetória desse trabalho e me ensinou que amar é ser livre, zeloso e perseverante.

Aos meus valiosos amigos que a vida me trouxe e os manteve ao meu lado: Guilherme, Joventino, André e aos companheiros de *Ellora* Bia e Romulo. Além de toda alegria, obrigado por manter as mãos dadas comigo nas minhas aflições.

Aos meus irmãos de vizinhança Lucas, Tiago e Jader, os quais suas famílias viraram minha família e que eu tive o privilégio de crescer junto e continuar evoluindo juntamente.

Ao meu velho companheiro de guerra Corsacha, que aguentou todo o trânsito paulista, minhas reclamações, cantorias e caronas por todo esse tempo de mestrado: obrigado meu querido amigo.

Aos companheiros que esse trabalho me trouxe: Joseilton Marques, Amanda Prilip, Denise Wakasugi, Thiago Oliveira, Pedro Gonçalves, Levi Francisco, Laíssa Adriana Bonifácio dos Santos, Amanda Shigasi, Marcelo Maduar, Lúcio Leonardo, Marcelo Bessa, Brigitte Roxana, Marcos Medrado, Luiz Flavio e todos os funcionários e funcionárias que trabalham no Centro de Metrologia das Radiações (CMR),

obrigado por toda ajuda e diversão que me acompanham nesses corredores desde minha Iniciação Científica.

À Cidade de Caxambu, assim como seus habitantes e funcionários do Parque das Águas de Caxambu, fica meu agradecimento por ter nos acolhido, apoiado e auxiliado durante nossas valiosas visitas a essa cidade encantadora.

ΕΠΙΓΡΑΦΕ

“Still alive who you love”
Bon iver

RESUMO

Meneghini, Arthur A. ***Avaliação da concentração de atividade de radionuclídeos naturais e caracterização química elementar das águas minerais da cidade de Caxambu, MG.*** 2019. 73p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN – CNEN/SP. São Paulo

O aumento no consumo de água mineral e sua utilização com ação medicamentosa alertam a necessidade da caracterização dessas fontes de água, pois essa é parte vital da dieta humana. Nas águas minerais, além dos elementos químicos estáveis, responsáveis pela composição química, a presença de radionuclídeos naturais das séries de decaimento do ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U e o ^{40}K concedem à água a propriedade radioativa. A incorporação desses radionuclídeos ocorre devido à crenoterapia, que é a utilização dessas águas para tratamentos de saúde, e é muito importante sob o ponto de vista de proteção radiológica devido a radiação ionizante proveniente desses radionuclídeos ser prejudicial à saúde. O Brasil abriga o maior parque de água mineral do mundo, na cidade de Caxambu, MG, “Parque das Águas de Caxambu” que possui doze fontes de águas minerais distribuídas pelo parque e um Gêiser de 60 metros de profundidade; existe também uma fonte localizada dentro do Hotel Glória, localizado em frente ao parque. O objetivo do presente trabalho foi avaliar as características físico-químicas dessas águas, sua composição química elementar, determinando os elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn e as concentrações de atividade dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po nas águas minerais coletadas na cidade de Caxambu; estimou-se também a dose efetiva comprometida devido ao consumo dessas águas, tanto para o público abaixo dos 15 anos quanto para o público adulto. Nas seis coletas realizadas, as maiores concentrações de atividades foram do ^{228}Ra e do ^{226}Ra e conseqüentemente sendo os que contribuíram para a dose efetiva comprometida, principalmente no indivíduo de até 15 anos no qual os valores são mais restritivos; as fontes de maior concentração de atividade e dose foram a D. Ernestina, Beleza e Venâncio. Na análise da composição química elementar, o Ca e K apresentaram valores muito acima dos encontrados na literatura e em relação aos outros elementos analisados.

Palavras-chave: água mineral, radionuclídeos naturais, Parque das Águas de Caxambu, caracterização química inorgânica; dose efetiva comprometida.

ABSTRACT

Meneghini, Arthur A. ***Assessment of the concentration of natural radionuclide activity and elemental chemical characterization of the mineral waters of the city of Caxambu, MG.*** 2017. 73p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN – CNEN/SP. São Paulo

The increase of mineral water consumption and its medicinal use results in the necessity of characterization of this waters sources, once that water is a vital part of human diet. In the mineral waters, in addition to the stable chemical elements, responsible for the chemical composition, the presence of natural radionuclides from the ^{238}U , ^{232}Th , ^{235}U series and ^{40}K give to the water radiation property. The incorporation of these radionuclides due to the chronotherapy, which is the use of these waters for health treatments, being of external use or by ingestion, is very important from the point of view of radiological protection because the ionizing radiation from these radionuclides is harmful to health. Brazil is home to the largest mineral water park in the world, in the city of Caxambu, MG, "Parque das Águas de Caxambu", which has twelve mineral water springs distributed by the park and a tubular well of 60 meters of depth, Geyser, 60 m deep; there is also a spring inside the Hotel Glória, located in front of the park. Therefore, the aim of the present work was to evaluate the physico-chemical characteristics of these waters, pH and temperature, their elemental chemical composition and the activity concentrations of radionuclides ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po in the mineral waters collected in the city of Caxambu; it was also estimated the committed effective dose due to the consumption of these waters, both for the public below the age of 15 and for the adult public. In the six collections performed, the highest activity concentrations were for ^{228}Ra and ^{226}Ra and consequently the ones that contributed to the highest committed effective dose, mainly in individuals up to 15 years of age, in which the values are more restrictive; the springs of the highest activity concentration and dose were D. Ernestina, Beleza and Venâncio. In the analysis of elemental chemical composition, the elements Ca and K presented values much higher than those found in the literature and also of the other elements analyzed.

Keywords: mineral water, natural radionuclides, Parque das Águas de Caxambu, elemental chemical characterization; committed effective dose compromised.

SUMÁRIO

1. Introdução.....	11
1.1. Revisão Bibliográfica.....	15
1.2. Área de estudo.....	17
2. Objetivo.....	28
3. Materiais e métodos.....	29
3.1. Coleta das amostras.....	29
3.2. Metodologias analíticas.....	29
3.2.1. Procedimento experimental para a determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb	30
3.2.2. Procedimento experimental para a determinação do ^{210}Po	33
3.2.3. Eficiência da contagem alfa total para a medida de ^{226}Ra	34
3.2.4. Eficiência de contagem beta de ^{226}Ra para a medida de ^{228}Ra e beta para ^{210}Pb	35
3.2.5. Eficiência de contagem alfa para ^{210}Po	35
3.2.6. Determinação dos limites inferiores de detecção para metodologia da determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po	36
3.2.7. Cálculo da dose efetiva comprometida.....	36
3.2.8. Procedimento experimental para a determinação de elementos por Fluorescência de raios X(EDXRF).....	37
4. Resultados e Discussão.....	38
4.1. pH e Temperatura.....	38
4.2. Concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po	39
4.3. Dose efetiva comprometida.....	53
4.4. Determinação elementar por Espectrometria de Fluorescência de raios X (EDXRF).....	64
4.5. Resumo da média dos resultados das análises realizadas com as águas do Parque das Águas de Caxambu.....	66
5. Conclusão.....	68
6. sugestão para trabalhos futuros.....	71
7. Referências bibliográficas.....	72

1. INTRODUÇÃO

Segundo o Sumário Mineral do Departamento Nacional de Produção Mineral - DNPM, a água mineral apresentou um consumo global em 2014, 6,2% maior do que o de 2013 (que já apresentava consumo 7% superior do consumo de 2012). Para o ano de 2015, esse aumento foi ainda mais expressivo, atingindo a marca de 16,5% maior do que o consumo de 2014. (DNPM, 2015).

A água mineral, em oposto aos recursos hídricos superficiais, tem atividade cinética lenta. Enquanto a velocidade de um rio pode ser expressa em quilômetros por hora, a água subterrânea chega a etapas em que sua velocidade é expressa em metros por ano. Tendo em vista o constante aumento no consumo dessas águas e que a expansão urbana tem atingido cada vez mais os arredores de estâncias hidrominerais, a proteção dos aquíferos e poços se torna imprescindível para a manutenção do meio ambiente, assim como da potabilidade das águas mineirais que ocasionalmente estarão disponíveis ao consumo. (Consórcio Guarani; Lemos, 2001)

Por ser um item indispensável da dieta humana, a água tem influência direta sobre a saúde humana, assim como seu desenvolvimento e qualidade de vida. Avaliar o risco causado ao indivíduo público devido a possíveis agentes contaminantes nessas águas oriundos de atividade humana torna-se então um processo fundamental para a manutenção da saúde pública; fatores como esses reforçam a importância da caracterização e regulamentação da água mineral.

Visando estabelecer padrões para o consumo humano dessas águas, foi dado no decreto-lei de 1945 que é competência do Ministério da Agricultura estabelecer os limites de potabilidade no Brasil. Nesse mesmo documento, definiram-se também as características que concerne a característica mineral à água, sendo “aquelas provenientes de fontes naturais ou de fontes artificialmente captadas que possuam composição química ou propriedades físicas ou físico-químicas distintas das águas comuns, com características que lhes confirmam uma ação medicamentosa” (Brasil, 1945).

Deve-se ter atenção também para a definição de água mineral pós envase, onde há a distinção da água mineral natural e da água natural, segundo o

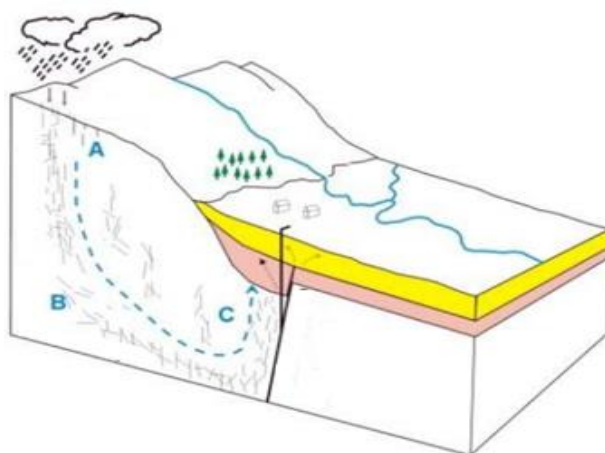
regulamento técnico para águas envasadas e gelo, publicação D.O.U. - Diário Oficial da União (De Mello 2005):

“Água Mineral Natural: é a água obtida diretamente de fontes naturais ou por extração de águas subterrâneas. É caracterizada pelo conteúdo definido e constante de determinados sais minerais, oligoelementos e outros constituintes considerando as flutuações naturais.

Água Natural: é a água obtida diretamente de fontes naturais ou por extração de águas subterrâneas. É caracterizada pelo conteúdo definido e constante de determinados sais minerais, oligoelementos e outros constituintes, em níveis inferiores aos mínimos estabelecidos para água mineral natural. O conteúdo dos constituintes pode ter flutuações naturais.”

Sua composição química dependerá da geologia do solo por qual essa água passa até sua captação, pois os elementos químicos encontrados na água estão presentes por meio de mecanismos físicos e químicos de dissolução e lixiviação do solo (FIG. 1.1). Outra característica obtida pela água nesses processos físico-químicos é a radiação, procedente dos radionuclídeos naturais. (Grotzinger, 2013)

Figura 1.1 - Processo de mineralização da água.



Fonte: Macêdo, 2001.

Após a infiltração de água meteórica ocasionada pela chuva (A) ocorre a infiltração da mesma pelo solo, dando início ao processo de percolação, percorrendo pela porosidade e/ou fraturas pela ação da gravidade até atingir um substrato menos permeável onde irá se acumular (B). É por meio desse processo que ocorre a recarga do lençol freático e a mineralização da água, na qual apropria-se de elementos (estáveis e naturalmente radioativos) e moléculas presentes no solo, obtendo então sua característica mineral. Após isso, devido ao aumento de gases dissolvidos na água e o aumento de temperatura devido ao gradiente de temperatura do solo, a água percorre novamente pelos substratos mais porosos e/ou fraturas até aflorar por meio

de nascentes, evento que origina o que chamamos de fontes de águas minerais (C). (Macêdo, 2001).

Os radionuclídeos naturais pertencem às séries de decaimento do ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th , apresentados nas FIG. 1.2, 1.3 e 1.4, estão presentes em toda a crosta terrestre e que, juntamente à radiação cósmica (como por exemplo o ^{14}C e o ^{10}Be formados na atmosfera) e o radionuclídeo ^{40}K , contribuem para a maior exposição do homem à radiação, sendo a radiação natural responsável por cerca de 2/3 da dose efetiva recebida pelos seres humanos (UNSCEAR, 2000; Rigozo & Nordemann, 1998).

Figura 1.2 - Série de decaimento radioativo do ^{235}U .

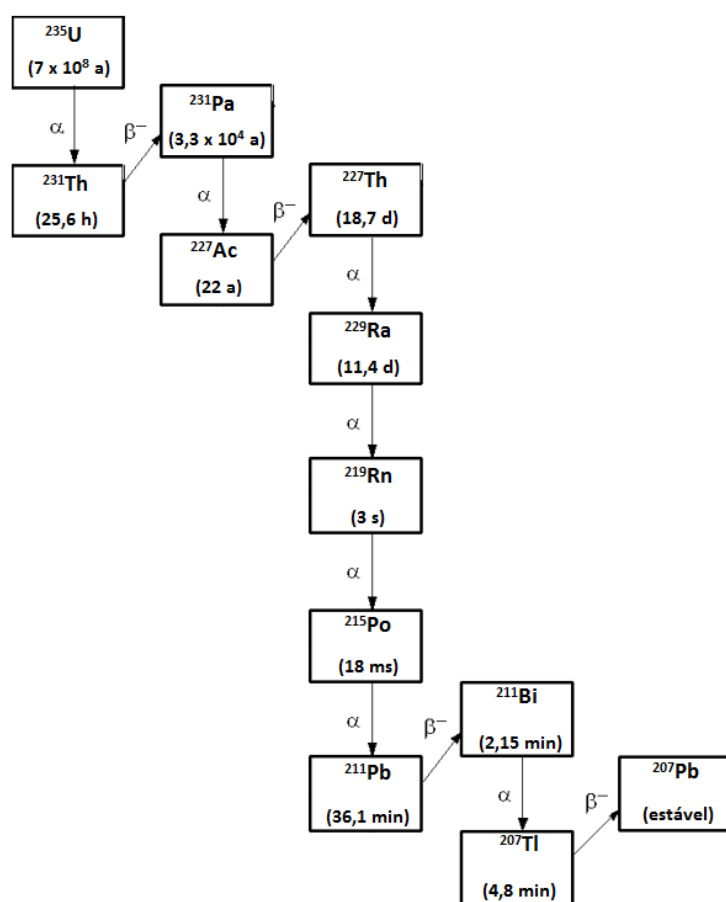


Figura 1.3 - Série de decaimento radioativo do ^{238}U .

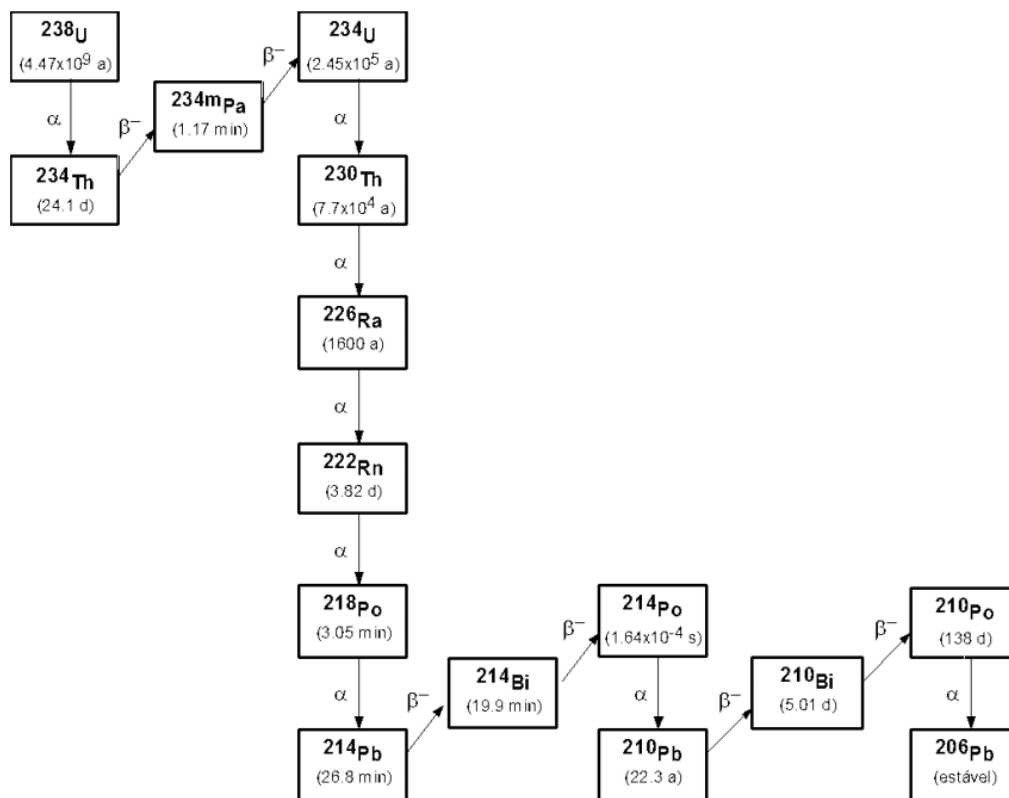
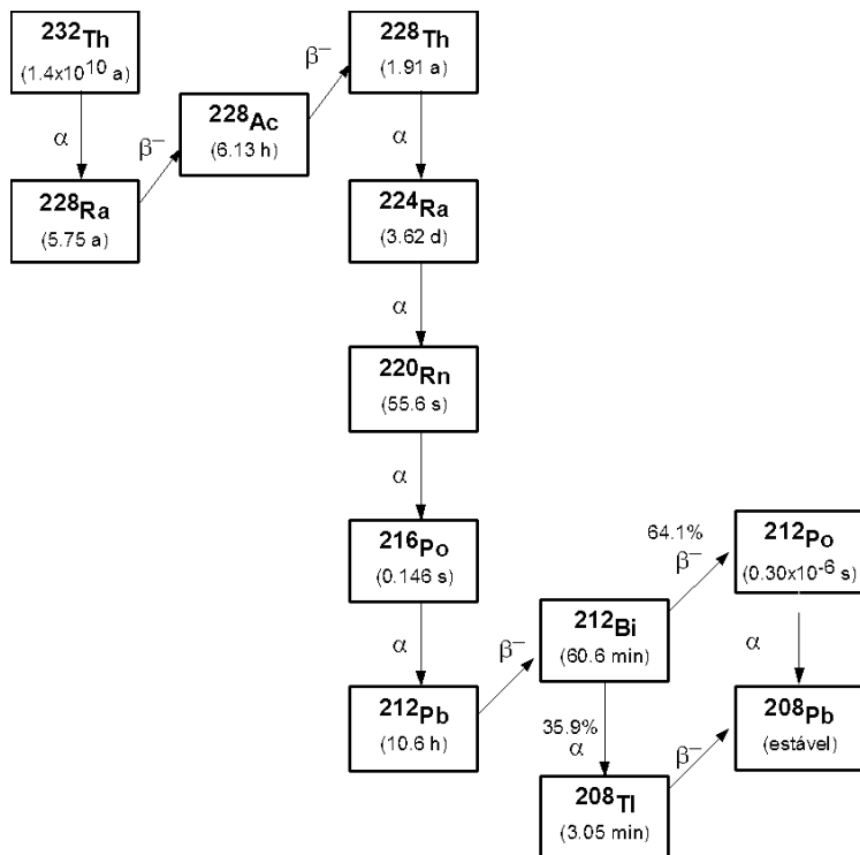


Figura 1.4 - Série de decaimento radioativo do ^{232}Th .



A prática de tratamentos crenológicos, que são tratamentos que utilizam as águas minerais de maneira medicamentosa, e o fato de que em muitas regiões do mundo essas águas participam de forma predominante na dieta do indivíduo do público são modos de exposição do homem à radiação natural e alertam a necessidade, no âmbito de proteção radiológica, de estudos de dose e dos possíveis efeitos que afetem a saúde humana (Eisenbud, 1987; Erden, 2014).

A crenoterapia, também chamada de termalismo, consiste na utilização de águas minerais com âmbito medicamentoso, normalmente atuando como um elemento complementar de um tratamento. Com foco em doenças crônicas, a utilização das águas como um agente terapêutico pode ser empregada por ingestão, banhos, saunas e inalações, de acordo com as características da água mineral e a enfermidade a ser tratada. Contudo, a crenoterapia atua também na promoção da saúde como um estilo de vida, agindo também na prevenção de doenças e na transformação da rotina de seus praticantes, com o objetivo de atuar em seu ritmo de vida. (Amaral, 2009; Lemos, 2007)

Ao considerar a geoquímica desses radionuclídeos naturais no ambiente supérgeno, devem-se destacar os isótopos de rádio e urânio por apresentarem maiores solubilidades, assim como os de radônio, que são encontrados dissolvidos nas águas. Isótopos de tório e radionuclídeos como o ^{210}Pb e ^{210}Po também são relevantes em estudos de dose e estão presentes nessas águas em níveis inferiores, devido sua mobilidade, porém concentrações maiores são verificadas em meio com maior concentração de material em suspensão. (Ferronskiĭ and Políakov, 1982; Cothorn and Rebers, 1990; WHO, 1993; WHO, 2006).

Contudo, as concentrações de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas minerais podem atingir valores maiores do que $1,0 \text{ Bq.L}^{-1}$ e $0,1 \text{ Bq.L}^{-1}$, respectivamente, que são padrões estabelecidos para água de consumo humano no Brasil pelo Ministério da Saúde (MS-2914, 2011).

1.1. Revisão Bibliográfica

Existem estudos em diversas abordagens sobre as águas minerais, como sua caracterização química, físico química e de isótopos radioativos naturais; entre todos foram destacados os que seguem abaixo.

Moreira (1993) realizou um estudo para determinação da concentração de ^{210}Pb nas águas mineiras de Águas da Prata, visando também uma avaliação da dose na população devido a ingestão dessas águas. Em seus resultados, concluiu que as

fontes Vilela e São Bento apresentaram os maiores valores de concentração de atividade, que teve o valor máximo de 1240 mBq.L⁻¹.

No mesmo parque de Águas da Prata, Oliveira (1993) realizou a avaliação da concentração de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra. Dos isótopos estudados, o ²²⁸Ra apresentou concentração de atividade média máxima de 2106 mBq.L⁻¹ e o ²²⁶Ra de 23,1 mBq.L⁻¹, sendo esse último radionuclídeo o maior contribuinte para a dose no indivíduo, como concluiu a autora.

Na Croácia, Marovic et al. (1995) também avaliaram a concentração de atividade de ²²⁶Ra em águas minerais utilizadas para ingestão e banho, assim como seu risco associado à saúde. Nesse estudo, o valor máximo de concentração de atividade para o radionuclídeo foi de 2,1 mBq.L⁻¹.

Bonotto e Bueno (2008) analisaram os radionuclídeos naturais ⁴⁰K, ²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra, ²²²Rn, ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb, ²³²Th, ²²⁸Th e ²²⁸Ra nas águas do aquífero Guarani por alfa e beta total. Os radionuclídeos foram analisados em 78 amostras de água subterrânea, distribuídas pelos estados de São Paulo, Mato Grosso do Sul, Paraná, Santa Catarina e Rio Grande do Sul. As amostras apresentaram concentração de atividade entre 0,03 Bq.L⁻¹ e 0,5 Bq.L⁻¹ e a dose efetiva total de 0,064 mSv.a⁻¹, resultados abaixo dos valores máximos recomendados para o consumo anual de 2 litros por dia dessas águas.

Wallner e Jabbar (2010) avaliaram as concentrações de atividade do ²²⁸Ra, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po, ²³⁸U e ²³⁴U em 24 marcas diferentes de água mineral engarrafada, além de avaliar sua contribuição de dose. Nesse estudo, concluíram que os maiores radionuclídeos que contribuíram para dose foram o ²²⁸Ra, seguido pelo ²¹⁰Pb e ²¹⁰Po.

Outro estudo realizado na área dos isótopos naturais foi feito por Herranz (2011), com o objetivo de avaliar o desequilíbrio do ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb em águas minerais. Nesse estudo, foi constatado que o desequilíbrio ocorre quando os valores de ²¹⁰Pb são superiores aos de ²¹⁰Po, devido às características partícula-reativas do Po nesse tipo de amostra.

Há também trabalhos realizados para estabelecer um banco de dados de informações e características de águas minerais, como o realizado por Fregstad et al., no qual foram avaliados mais de 70 parâmetros químicos de uma seleção de 884 amostras de água mineral engarrafada. Nesse estudo, os autores foram capazes de identificar e comparar elementos traços e maiores com o de outros estudos na Europa, bem como concluir que apesar de as águas engarrafadas conterem Pb

(abaixo do nível máximo estabelecido), essas apresentam valores significativamente menores de metais associados com Pb do que nas águas minerais e de torneira.

Santos (2018) avaliou a concentração de ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po , suas doses por ingestão e caracterização química inorgânica nas águas minerais dos parques das águas de Cambuquira e Marimbeiro. Para o público adulto, os radionuclídeos ^{228}Ra e ^{226}Ra apresentaram em algumas fontes doses que excederam os limites recomendados pela OMS.

Wakasugi (2018) avaliou também a concentração de ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po , suas doses e caracterização química inorgânica em águas minerais dos parques hidrominerais de Águas de Contendas e Lambari. Suas maiores concentrações e doses foram obtidas pelos radionuclídeos ^{228}Ra e ^{226}Ra , excedendo os limites recomendados pela OMS em algumas fontes.

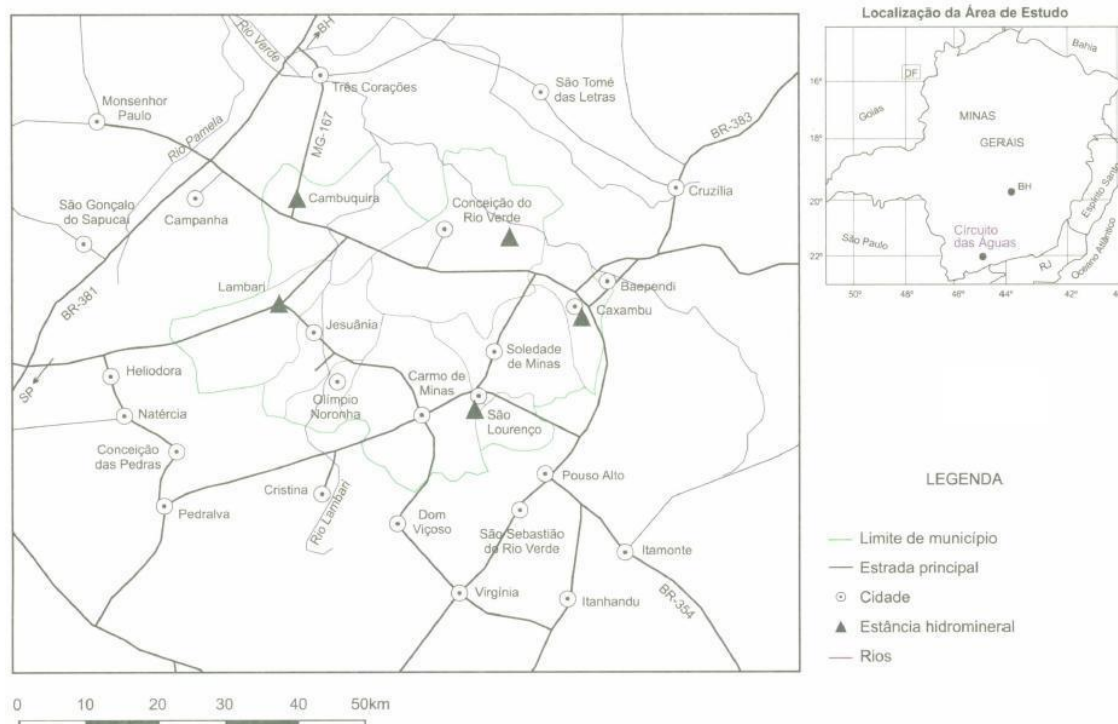
O presente trabalho, junto com os de Santos(2018) e Wakasugi (2018), é parte de um projeto estabelecido entre o Laboratório de Radiometria Ambiental – LRA e os responsáveis pela administração dos parques das águas do Circuito das Águas de Minas Gerais, os quais são gerenciados pela Companhia de Desenvolvimento Econômico de Minas Gerais – CODEMIG, que teve como objetivos principais a caracterização química inorgânica e avaliação da concentração de ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po e suas respectivas doses, das águas minerais de seus parques.

1.2. Área de estudo

A área de estudo do presente trabalho é o Parque das Águas de Caxambu, localizado na cidade de Caxambu, Minas Gerais. Caxambu pertence a uma das regiões famosas pelo uso terapêuticos e amplo consumo de águas minerais, na região sul de Minas Gerais, denominado “Circuito das Águas de Minas Gerais”, FIG. 1.5, que está localizado entre as capitais de São Paulo, Rio de Janeiro e Minas Gerais. O circuito é composto pelas cidades de Baependi, Cambuquira, Campanha, Carmo de Minas, Caxambu, Conceição do Rio Verde, Lambari, Maria da Fé, Soledade de Minas e Três Corações.

Com população estimava em 21.703 habitantes, Caxambu está localizado ao sudeste de Minas Gerais, no planalto da Mantiqueira e está inserido na bacia hidrográfica do Rio Verde e na sub-bacia do rio Baependi. Sua área é de 100,483 km² e está situada em altitude de 922 metros, com coordenadas geográficas 21° 58' 38" S 44° 55' 57" O. (IBGE, 2017/2018)

Figura 1.5 - Circuito das águas de Minas Gerais



Fonte: CPRM, 1998 (adaptado)

O clima na região é classificado como clima temperado úmido com inverno seco e verão temperado, com variação de temperatura média entre 18° e 19°C com a estação mais chuvosa o verão e a mais seca o inverno. Em regiões mais altas, há a ausência da seca no inverno. (CPRM, 1998)

Apesar de incerta de como a primeira fonte foi descoberta, foi graças a esse episódio que a região, que pertencia a Baependi, começou a ser conhecida como “Água Santa” e teve seu primeiro registro histórico por volta de 1814, apesar de existirem indícios que essas águas já eram conhecidas desde 1770. (Lemos, 2007)

Com a fama das Águas Santas se espalhando pela região, o que antes era descrito como uma mata virgem, agora começa a ter tubos de madeiras e caminhos trilhados para auxiliar na captação e chegada à fonte. (Lemos, 2007)

Algum tempo depois quando o local era conhecido como “Águas Santas de Baependi”, devido a alguns acampamentos feitos no local por enfermos, o local foi dado como insalubre e a mata foi queimada, deixando agora a conhecida Água Santa no esquecimento. Porém, em 1843, um fazendeiro chamado Antonio de Oliveira Arruda retornava com sua esposa que havia feito tratamento inefetivo com as águas de Lambari, repousou na casa de parentes na fazenda Caxambu, local onde outrora existiu a fonte Água Santa. (Lemos, 2007)

Após melhora de sua esposa ao reinaugurar a fonte, o fazendeiro decidiu investir seu dinheiro para reestruturar a fonte e ampliar a região para descobertas de mais fontes. Seu plano obteve sucesso e o local foi expandindo (que hoje se conhece como Parque das Águas de Caxambu) segundo relatório do ano de 1866. Nesse ano, já se era de conhecimento as propriedades das fontes e o local já contava com casas, hotéis e comércios, até a construção da primeira capela em 1872, que foi dedicada à Nossa Senhora dos Remédios (atualmente é a igreja matriz da cidade de Caxambu). (Lemos, 2007)

Um fato marcante para a história de Caxambu ocorreu entre os anos 1860 e 1880, que foi a visita da família imperial, para que a princesa Isabel e o conde d'Eu realizassem um tratamento de saúde com as águas medicinais. Com a repercussão da visita, iniciou-se as primeiras análises químicas das fontes e a construção do balneário para termalismo. (Prefeitura Municipal de Caxambu, 1998).

Por fim, tendo sido reconhecida como vila de Caxambu no início de 1900, foi em 1915 que finalmente ocorre a elevação à categoria de cidade, emancipando-se de Baependi e sendo reconhecida agora por Caxambu. (Prefeitura Municipal de Caxambu, 1998).

As “Águas de Caxambu” são amplamente utilizadas com finalidade medicamentosa, como águas diuréticas, águas catárticas (com propriedades de limpeza, purificação, facilitando as funções hepato-biliares e estimulando funcionalidade do intestinal diretamente ou indiretamente), e águas com propriedades antiflogísticas (anti-inflamatórias).

Apesar de existirem poucos estudos sobre radioatividade natural na região, o trabalho como de Negrão (2012), realizado no Parque das Águas de Caxambu, determinou concentrações relevantes de ^{226}Ra e ^{228}Ra em algumas fontes. Em questão de dose efetiva comprometida, onde o nível de referência recomendado pela Organização Mundial da Saúde é de $0,1 \text{ mSv a}^{-1}$ (WHO, 2006), também houve níveis alarmantes, sendo esse valor foi ultrapassado em quase todas as fontes do parque de Caxambu.

No Parque das Águas de Caxambu estão distribuídas 12 fontes de água mineral (FIG.1.6), denominadas: Leopoldina, Beleza, Duque de Saxe, Princesa Isabel e Conde D'Eu, Dom Pedro, Viotti 1 e 2, Venâncio, Mayrink I, II e III e Ernestina Guedes. Também há um poço tubular de 60 metros de profundidade que periodicamente apresenta jorros de água (Gêiser).

Figura 1.6 – Parque das Águas de Caxambu e suas fontes.



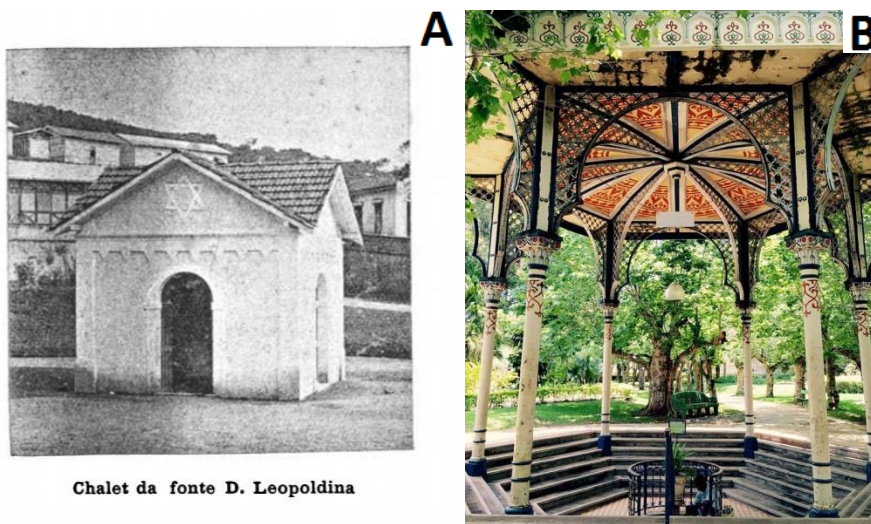
Fonte: Guia de visitação Palace Hotel (adaptado)

Para descrição e entendimento da disposição das fontes do Parque das Águas de Caxambu, a FIG. 1.6 foi numerada de 0 a 13 com o ponto 0 a referência do portão principal do parque.

Dada entrada no parque, encontra-se à direita, no ponto 1, a fonte D. Leopoldina.

1 - D. Leopoldina: com uma das mais bonitas arquiteturas do parque, tem seu projeto arquivado no IEPHA-MG (Instituto Estadual do Patrimônio Histórico e Artístico de Minas Gerais) com o carimbo “*Société Anonyme des Acières D’Angleur*” “*Tilleur – Belgique*”. Em homenagem a filha do imperador D. Pedro II, a fonte (FIG. 1.7a e 1.7b) tem como indicação seu uso para auxiliar a digestão.

Figura 1.7: Fonte D. Leopoldina no final do séc. XIX (A) e no ano de 2016 (B).



Chalet da fonte D. Leopoldina

Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação.

Contornando a fonte, encontra-se a praça principal do parque, que abriga o Balneário (2) e as fontes Duque de Saxe (3) e Beleza (4).

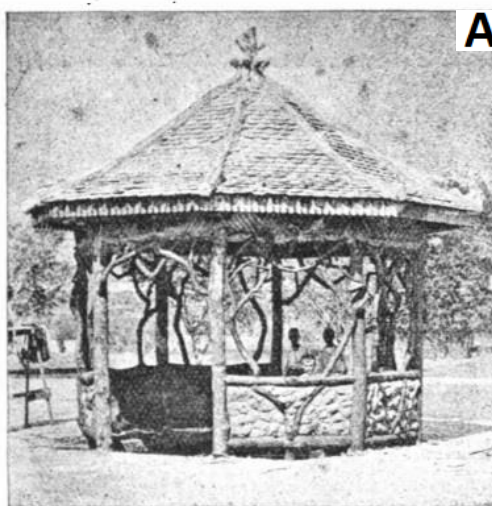
2 - Balneário: projetado em 1900 pelo arquiteto Alfredo Burnier, o prédio disponibiliza (FIG.1.8) diversos tipos de tratamentos de saúde e estético por meio de banhos, imersões, duchas e saunas.

Figura 1.8: Balneário no ano de 2016 (B).



3 - Duque de Saxe: com seu nome dado em homenagem ao marido de D. Leopoldina, a fonte (FIG. 1.9a e 1.9b) é utilizada principalmente para tratamento de visícula e fígado.

Figura 1.9: Fonte Duque de Saxe no final do séc. XIX (A) e no ano de 2016 (B).



Fonte Duque de Saxe



Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação.

4 - Beleza: de arquitetura similar à fonte D. Leopoldina, a fonte Beleza (FIG. 1.10) foi perfurada pelo Dr. Viotti e por muito tempo foi conhecida na região como fonte

intermitente. Seu uso é dos mais diversos, sendo indicada para digestão, combate ao estresse e feridas de pele.

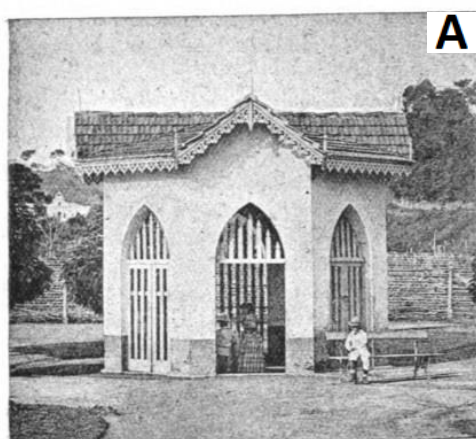
Figura 1.10: Fonte Beleza no ano de 2016.



Fonte: autor da dissertação.

Ao lado do balneário encontram-se as fontes D. Pedro (5) e Viotti 1 e 2 (6).
5 - D. Pedro: conhecida também como “fonte da coroa” (FIG. 1.11a e 1.10b), foi por muitos anos a água utilizada para engarrafamento e comercialização. Seu nome foi dado em homenagem à família imperial e sua água é recomendada para digestão e limpeza do sistema renal.

Figura 1.11: Fonte D. Pedro no final do séc. XIX (A) e no ano de 2016 (B).



Chalet da fonte D. Pedro

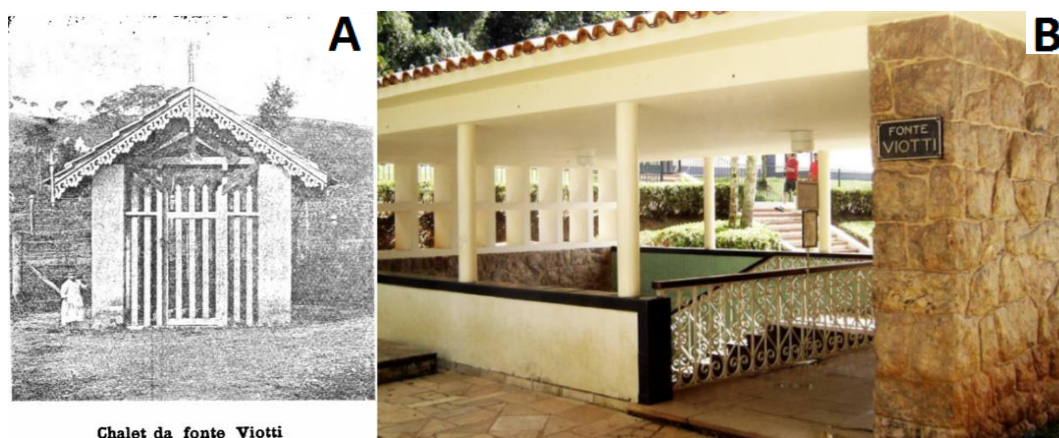


Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação

6 - Viotti 1 e 2: fonte que dispõe de duas torneiras, tem seu nome em homenagem ao Dr. Polycarpo Rodrigues Viotti, médico que deu grande visibilidade ao parque devido

aos seus 50 anos de atividade científica e medicinal com as águas do parque. As águas da fonte Viotti (FIG. 1.12a e 1.12b) tem ampla recomendação que varia de uso diurético até normalização da pressão vascular.

Figura 1.12: Fonte Viotti no final do séc. XIX (A) e no ano de 2016 (B).



Chalet da fonte Viotti

Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação.

Próximo às fontes Viotti e em direção ao lago do parque, encontra-se um bosque que abriga a fonte Venâncio (7), o gêiser (8), o prédio com as três fontes Mayrink (9,10 e 11) e à margem do lago a fonte D. Ernestina (12).

7 - Venâncio: o nome da fonte (FIG. 1.13) foi dado em homenagem a um empregado do parque responsável pela captação de diversas fontes, inclusive em Lambari e Cambuquira. Seu uso é indicado para o sistema cardiovascular e nervoso.

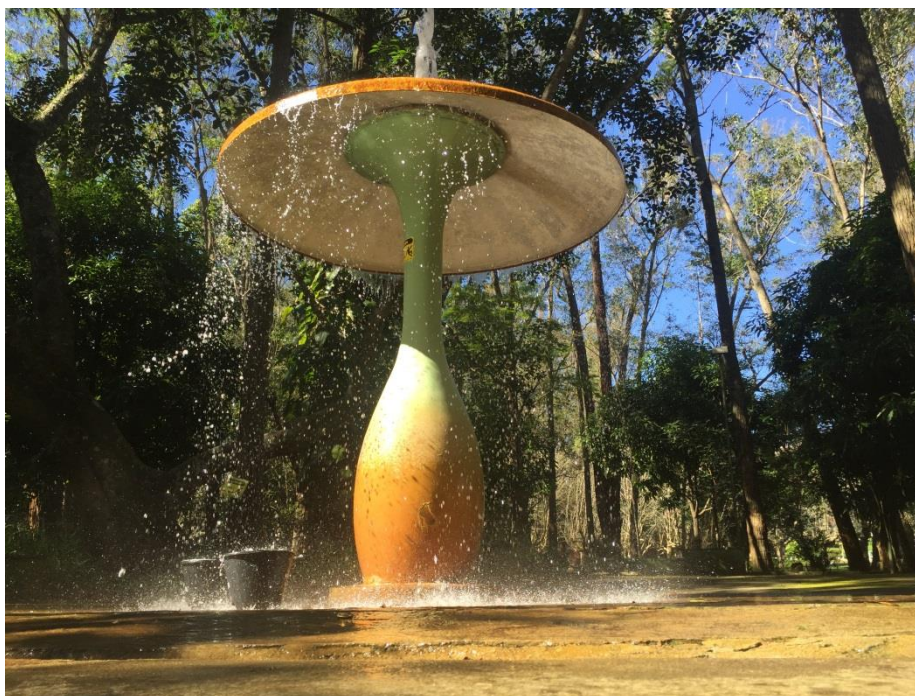
Figura 1.13: Fonte Venâncio no ano de 2016.



Fonte: autor da dissertação.

8 - Gêiser: em meio ao bosque que abriga a fonte Venâncio, há uma clareira que dá lugar ao único gêiser registrado no Brasil, o gêiser Floriano de Lemos (FIG. 1.14).

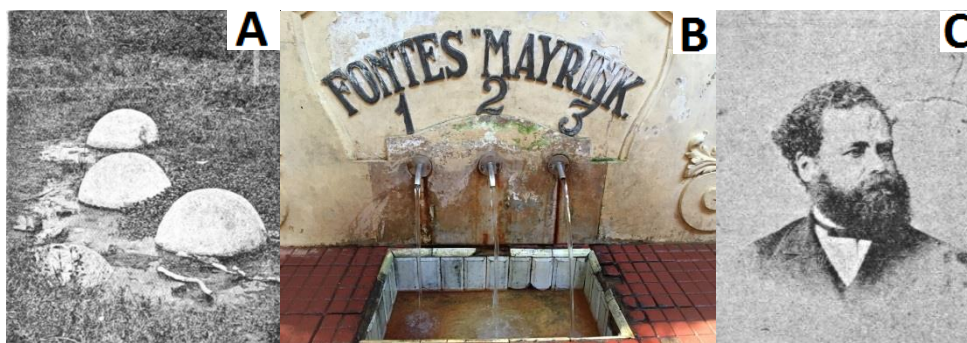
Figura 1.14: Gêiser no ano de 2016.



Fonte: autor da dissertação.

9,10 e 11 - Mayrink 1, 2 e 3: As fontes (FIG. 1.15a e 1.15b) tem esse nome em homenagem a Francisco de Paula Mayrink (FIG. 13c), que adquiriu a Empresa das Águas de Caxambu em 24 de maio de 1890. Deputado de grande influência foi um dos responsáveis pela chegada da estrada de ferro a Caxambu e trabalhou pela emancipação político administrativo da cidade. A Mayrink 1 e 3 são indicadas para garganta enquanto a Mayrink 2 para irritação nos olhos, sendo também as três águas engarrafadas para venda externa. (fonte livro)

Figura 1.15: Fontes Mayrink 1, 2 e 3 no início do séc. XX (A), no ano de 2016 (B) e imagem do político Francisco de Paula Mayrink, do qual veio o nome das fontes (C).



Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação.

12 - Ernestina: O nome dessa fonte (FIG. 1.16) foi dada em homenagem a membros da comunidade que participaram do desenvolvimento da cidade de Caxambu. Sua água é indicada para afecções subcutâneas por meio de banhos e compressas.

Figura 1.16: Fonte Ernestina Guedes no ano de 2016.



Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação.

Por fim, ao seguir de volta ao portão principal pela parte sul do parque, encontra-se a fonte D. Isabel (13).

13 - D. Isabel: Em 1868 a Princesa Isabel e seu marido Conde d'Eu foram até o parque pela fama de suas águas minerais curativas e supostamente, ao fazer tratamento com a água, Isabel curou-se de sua infertilidade e a fonte (FIG. 1.17a e 1.17b) recebe seu nome em homenagem ao fato.

Figura 1.17: Fonte D. Isabel no final do séc. XIX (A) e no ano de 2016 (B).



Chalet da Fonte D. Isabe



Fonte: Monat (1894), Caxambu; autor da dissertação.

Uma das maiores estâncias minerais do Brasil, as águas de Caxambu são utilizadas há séculos para tratamentos de saúde, sendo a descoberta das fontes das águas minerais por volta de 1814 que ganharam fama e visibilidade devido às “curas milagrosas” obtidas pelas primeiras pessoas a utilizarem essas águas com propósitos medicinais, dando na época o nome de “Águas Virtuosas de Caxambu” ao local. (Prefeitura Municipal de Caxambu, 1998)

As primeiras captações datam de 1884, nas Fontes Dom Pedro e Princesa Isabel. Em seguida, vieram Viotti e Beleza em 1885; Dona Leopoldina, Duque de Saxe e Mayrink, em 1891; Venâncio (1935-39) e Ernestina Guedes (1958). A água mineral do parque é utilizada para ingestão ou em banhos na cura de diversos males estomacais, intestinais, renais, diuréticos, circulatórios, dermatológicos, entre outros. Também é engarrafada e comercializada nacionalmente (Fonte Mairynk).

Na TAB. 1.1 são apresentadas as características químicas gerais e data de captação das fontes do Parque das Águas de Caxambu (Lemos, 2007)

Tabela 1.1: Características químicas gerais e data de captação das fontes do Parque das Águas de Caxambu.

Fonte	Data de Captação	Características Químicas
Mayrink 1	1891	Água mineral carbogasosa e acídulo-gasosa.
Mayrink 2	1891	Água mineral carbogasosa e acídulo-gasosa.
Mayrink 3	1891	Água mineral sem gás.
D. Isabel	1884	Água mineral bicarbonatada, alcalina terrosa cálcica, alcalina terrosa magnésiana, ferruginosa, carbogasosa e fluoretada.
Ernestina	1958	Água mineral alcalina bicarbonatada, alcalina terrosa, alcalina terrosa cálcica, alcalina terrosa magnésiana, carbogasosa, ferruginosa e fluoretada.
D. Pedro	1884	Água mineral carbogasosa, bicarbonatada, alcalina terrosa e fluoretada.
Viotti 1	1885	Água mineral fluoretada, ferruginosa e carbogasosa.
Viotti 2	1885	Água mineral fluoretada, ferruginosa e carbogasosa.
D. Leopoldina	1891	Água mineral carbogasosa, bicarbonatada, alcalina terrosa magnésiana, alcalina terrosa cálcica e fluoretada.
Beleza	1885	Água mineral alcalina bicarbonatada, alcalina terrosa cálcica, alcalina terrosa magnésiana, ferruginosa, fluoretada e carbogasosa.
Venâncio	1935	Água mineral alcalina, carbogasosa, alcalina-terrosa-bicarbonatada, cálcica, ferruginosa, magnésiana e fluoretada.
D. de Saxe	1891	Água alcalina bicarbonatada, alcalina terrosa, alcalina terrosa cálcica, alcalina terrosa magnésiana, fluoretada, carbogasosa e sulfurosa
Gêiser	-	Água multi – mineralizada contém sais dissolvidos e possui grande quantidade de gás.

Fonte: Lemos, 2007

2. OBJETIVO

Os objetivos principais do presente trabalho foram determinar as concentrações de atividade dos radionuclídeos naturais ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po por separação radioquímica e medida em detector proporcional de fluxo gasoso e espectrometria alfa nas águas minerais da cidade de Caxambu, MG, assim como realizar a caracterização química inorgânica destas águas minerais determinando as concentrações dos elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn por fluorescência de raio X.

Os objetivos específicos foram:

- determinar os parâmetros físico-químicos da água: pH e temperatura;
- estimar a dose efetiva comprometida devido ao consumo dessas águas.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

3.1. Coleta das amostras

As amostras de água foram coletadas a cada três meses, totalizando seis coletas nas estações de outono e primavera de 2015 e nas estações de verão, outono, inverno e primavera de 2016, nas 12 fontes de águas minerais existentes dentro do perímetro do Parque das Águas de Caxambu, além de uma fonte de água mineral ferruginosa existente no Hotel Glória, de uma torneira de uso comum do balneário presente no parque, do gêiser e de uma torneira de uso comum da cidade. No total, foram coletadas 10 L de cada amostra para a realização dos ensaios radioquímicos necessários.

Em cada campanha trimestral de amostragem foram avaliados os parâmetros físico-químicos pH e temperatura das amostras, sendo o pH mensurado no laboratório e a temperatura *in situ*.

Após a coleta, o pH das águas foi mantido $\leq 2,0$ com HNO₃ 50% para preservar as amostras e evitar a adsorção dos radionuclídeos nos frascos de polietileno, pois de uma forma geral amostras preservadas dessa maneira permanecem estáveis (Carvalho, 2014).

3.2. Metodologias analíticas

As técnicas analíticas empregadas para a determinação dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb foram alfa e beta total após separação radioquímica, utilizando um detector proporcional de fluxo gasoso e baixa radiação de fundo para medida das amostras (Damatto, 2009).

Para a determinação do ²¹⁰Po foi empregado o método de Nieri (1996) com adaptações, que consistiu na utilização da espectrometria alfa para identificar e quantificar o referido radionuclídeo.

Os métodos utilizados para a determinação dos radionuclídeos foram validados através do Programa Nacional de Intercomparações – PNI que é coordenado pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria - IRD, onde uma amostra

com os radionuclídeos de interesse é previamente pronta e enviada ao laboratório, tendo uma posterior comparação dos resultados para analisar a exatidão e precisão da metodologia; os resultados obtidos estavam dentro do intervalo de concentração aceitável.

Para a caracterização química inorgânica foi utilizado a fluorescência de raios X para determinar os elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb,, Se, Ti, V e Zn. As análises foram realizadas no Laboratório de amostras químicas, localizado no Centro de Lasers/ Centro de Química Ambiental (CLA/ CQMA -IPEN) e o equipamento utilizado foi o EDX-720 marca Shimadzu.

3.2.1. Procedimento experimental para a determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb

As metodologias radioquímicas analíticas utilizadas para as determinações dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra seguiu o procedimento descrito em Oliveira (1993) e do radionuclídeo ^{210}Pb seguiu Moreira (1993).

Para a determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb , um volume de 4 L foi dividido em duas alíquotas de 2 L e concentradas para um volume final de 1 L, e foram adicionados os carregadores de bário (20 mg.mL^{-1}) e chumbo (20 mg.mL^{-1}), 1 mL de cada. Após a adição dos carregadores, foram adicionados 7 mL de ácido cítrico 2 mol.L^{-1} , e gotas do indicador vermelho de metila. Lentamente adicionou-se NH_4OH concentrado até a mudança de coloração do indicador, indicando que a solução estava entre pH 4,5 - 5,0.

A solução foi aquecida até ebulição e foram adicionados 50 mL de H_2SO_4 3 mol.L^{-1} sob agitação para que ocorresse a precipitação; deixou-se o precipitado decantar até o dia seguinte. O sobrenadante foi descartado e o precipitado transferido para tubo de centrífuga. A solução foi centrifugada a 2000 rpm por 10 minutos, e o sobrenadante descartado.

Adicionaram-se ao precipitado 2,0 g de ácido nitrilo tri-acético (Titriplex I), 40 mL de água superpura e 7 mL de NaOH 6 mol.L^{-1} . A solução foi aquecida em banho-maria até a ebulição para solubilização do precipitado. Adicionou-se 5 mL de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (25 g.L^{-1}), ajustou-se o pH entre 4,5 – 5,0 com ácido acético glacial para que o $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ precipitassem enquanto o chumbo permanecia em solução, complexado com o ácido nitrilo tri-acético (NTA). Deixou-se o precipitado decantar até o dia seguinte.

A solução foi centrifugada a 2000 rpm por 10 minutos e o sobrenadante foi separado para análise de chumbo. O precipitado foi lavado com acetato de amônio 20% e centrifugado novamente sendo o sobrenadante adicionado ao anterior. O precipitado foi utilizado na determinação de rádio.

3.2.1.1. Determinação do ^{226}Ra e ^{228}Ra

Adicionaram-se ao precipitado 2,0 g de ácido etileno di-amino-tetra-acético (EDTA), 40 mL de água destilada e 5 mL de NH_4OH concentrado. A solução foi aquecida até ebulição em banho-maria para solubilização do precipitado. Adicionou-se 5 mL de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ (25 g.L^{-1}), ajustou-se o pH entre 4,5 – 5,0 com ácido acético glacial para que o $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ precipitasse, e deixou-se decantar até o dia seguinte.

A solução foi filtrada à vácuo com papel de fibra de vidro. O rendimento químico do procedimento foi determinado gravimetricamente a partir da massa de carregador de bário adicionado; 1 mL de carregador de Ba (20 mg.mL^{-1}) corresponde a uma massa de 34,0 mg $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$.

O ^{226}Ra e ^{228}Ra foram determinados após 21 dias da precipitação, pela medida alfa total e beta total do precipitado de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$ em um detector proporcional de fluxo gasoso de baixa radiação de fundo. As amostras foram medidas por 200 minutos. A concentração de atividade de ^{226}Ra foi determinada segundo a expressão 1:

$$A (^{226}\text{Ra}) = \frac{R_a - R_b}{R_q \cdot E \cdot m \cdot \text{fabs} \cdot [1 + k (1 - e^{-\lambda t})]} \quad (1)$$

Onde:

$A (^{226}\text{Ra})$ = concentração de atividade de ^{226}Ra da amostra em mBq.g^{-1}

R_a = taxa de contagem total da amostra em cps

R_b = taxa de contagem da radiação de fundo em cps

R_q = rendimento químico

E = eficiência de contagem em cps.dps^{-1}

m = massa da amostra em g

$\text{fabs} (^{226}\text{Ra})$ = coeficiente de auto absorção do ^{226}Ra no precipitado de RaSO_4

λ = constante de desintegração do ^{226}Ra ($0,181\text{d}^{-1}$)

t = tempo transcorrido entre a precipitação do $^{226}\text{RaSO}_4$ e a contagem em dias

k = constante de auto absorção

A concentração de atividade de ^{228}Ra foi determinada segundo a expressão 2:

$$A(^{228}\text{Ra}) = \frac{Rn - Bg}{60 \cdot Rq \cdot Ef\beta(^{228}\text{Ra}) \cdot Q} - \frac{Ef\beta(^{226}\text{Ra}) \cdot A(^{226}\text{Ra})}{Ef\beta(^{228}\text{Ra})} \quad (2)$$

Onde:

$A(^{228}\text{Ra})$ = concentração de atividade do ^{228}Ra , em mBq.g^{-1} ;

Rn = taxa de contagem beta total obtida (cpm);

Bg = taxa de radiação de fundo beta total (cpm);

RQ = rendimento químico;

$Ef\beta(^{228}\text{Ra})$ = eficiência de contagem beta total, calculada pela medida de um precipitado padrão de $\text{Ba}(^{228}\text{Ra})\text{SO}_4$ (cps.dps^{-1});

$Ef\beta(^{226}\text{Ra})$ = eficiência de contagem beta total, calculada pela medida de um precipitado padrão de $\text{Ba}(^{226}\text{Ra})\text{SO}_4$ (cps.dps^{-1});

$A(^{226}\text{Ra})$ = concentração de atividade calculada para o ^{226}Ra , em Bq.g^{-1} ;

Q = massa da amostra (g).

3.2.1.2. Determinação do ^{210}Pb

O sobrenadante obtido da centrifugação que contém o chumbo foi aquecido em banho-maria e 1 mL de Na_2S 1 mol.L^{-1} foi adicionado para que o chumbo precipitasse na forma de sulfeto. A solução foi centrifugada a 2000 rpm por 30 minutos, o sobrenadante foi descartado, e o precipitado foi lavado com água destilada e centrifugado novamente.

O sobrenadante foi descartado e adicionou-se ao precipitado 2 mL de água superpura e gotas de HNO_3 concentrado. O chumbo permaneceu em solução e formou-se um precipitado amarelo de enxofre elementar. A solução foi filtrada com papel qualitativo; adicionou-se ao filtrado acetato de amônio 40% até pH 4,5 – 5,0 e aqueceu-se até ebulição. Adicionou-se 2,5 mL de Na_2CrO_4 30% para precipitação, sob aquecimento, mantendo-se por mais 10 minutos. A solução foi filtrada à vácuo com papel de fibra de vidro.

O rendimento químico do procedimento foi determinado gravimetricamente a partir da massa de carregador de chumbo adicionado; 1 mL de carregador de Pb (20 mg.mL^{-1}) corresponde a uma massa de 31,2 mg PbCrO_4 . O ^{210}Pb foi determinado após 10 dias da precipitação, pela medida beta total do precipitado PbCrO_4 , em um

detector proporcional de fluxo gasoso de baixa radiação de fundo. A concentração de atividade de ^{210}Pb foi determinada segundo a expressão 3:

$$A = \frac{R_a - R_0}{R_q \cdot E \cdot m \cdot (1 - e^{-\lambda t})} \quad (3)$$

Onde:

A = concentração de atividade da amostra em mBq.g^{-1}

R_a = taxa de contagem total da amostra em cps

R_0 = taxa de contagem da radiação de fundo em cps

R_q = rendimento químico

E = eficiência de contagem em cps.dps^{-1}

m = massa da amostra em g

t = tempo transcorrido entre a precipitação do PbCrO_4 e a contagem em dias

λ = constante de desintegração do ^{210}Bi ($0,183\text{d}^{-1}$)

3.2.2. Procedimento experimental para a determinação do ^{210}Po

A determinação do ^{210}Po seguiu o método descrito por Nieri (1996) com adaptações.

Para determinação do ^{210}Po , o volume de 1 litro de amostra foi separado, adicionado 1 μL de traçador de ^{209}Po e concentrado até próximo à secura em temperatura de até 80 °C, em razão de que acima dessa temperatura ocorre a volatilização do Po. (Mazzilli, 2000)

Como as amostras são armazenadas em meio nítrico e a metodologia requer um meio clorídrico, foi necessário alterar o meio. Para isso, empregou-se uma ressuspensão e secura da amostra com HCl 6,25 mol.L^{-1} três vezes e na quarta vez, adicionou-se 2 ml de HCl 2 mol.L^{-1} .

Após o acerto do pH, avolumou-se a amostra com água superpura até 200 ml, adicionou-se 50 mg de ácido ascórbico e o pH da amostra foi ajustado com NH_4OH 25% a pH entre 1,5 e 2.

Um disco de cobre lavado com água superpura e polido é utilizado para a deposição espontânea do ^{210}Po e do traçador ^{209}Po . O disco é travado em uma célula de deposição e colocado no recipiente contendo a amostra. O processo de deposição espontânea das amostras ocorreu após agitação constante e aquecimento de até 80°C por 4 horas.

Em seguida, todo o líquido foi descartado e retirou-se o disco de cobre da célula de deposição. O disco foi lavado repetidamente com água superpura e seco em chapa aquecedora a 80°C. O ^{210}Po foi determinado em um detector de silício do tipo barreira de superfície. A concentração de atividade do ^{210}Po foi determinada a partir da expressão (4):

$$A(^{210}\text{Po}) = \frac{C_a - C_{BG}}{T \cdot Ef \cdot RQ \cdot V} \cdot 10^3 \quad (4)$$

Onde:

$A(^{210}\text{Po})$ = concentração de atividade de ^{210}Po na amostra (mBq.L^{-1});

C_a = contagem da amostra no intervalo de interesse;

C_{BG} = contagem do BG;

T = tempo de contagem (s);

Ef = eficiência de detecção (cps . dps);

RQ = rendimento químico;

V = volume da solução (l).

3.2.3. Eficiência da contagem alfa total para a medida de ^{226}Ra

Para o cálculo de eficiência alfa necessário para a medição do ^{226}Ra , realizou-se a calibração do detector proporcional de fluxo gasoso de baixa radiação de fundo (OLIVEIRA, 1993) utilizando uma fonte eletrodepositada em disco de aço-inox de ^{241}Am . A fonte, que possui concentração conhecida de 18 Bq, foi medida três vezes em cada detector por 60 minutos. Calculou-se a eficiência conforme a expressão (5)

$$EF\alpha(^{226}\text{Ra}) = \frac{Rn - Bg}{A_{cor}(^{241}\text{Am}) \cdot 60 \cdot RQ} \quad (5)$$

Onde:

$EF\alpha(^{226}\text{Ra})$ = eficiência de contagem alfa para medida de ^{226}Ra , calculada pelo padrão de ^{241}Am (cps/dps);

Rn = taxa de contagem alfa medida do padrão de ^{241}Am (cpm);

Bg = background alfa do detector (cpm);

$A_{cor}(^{241}\text{Am})$ = atividade da fonte de ^{241}Am em Bq;

RQ = rendimento químico do padrão (%).

O valor médio para eficiência alfa total para ^{226}Ra foi de 24,5%

3.2.4. Eficiência de contagem beta de ^{226}Ra para a medida de ^{228}Ra e beta para ^{210}Pb

A eficiência para amostras de $\text{Ba}(^{228}\text{Ra})\text{SO}_4$ também foi realizada por OLIVEIRA (1993) por meio da medida beta total com a adição de um padrão de referência de ^{228}Ra . Assim, a eficiência beta do ^{228}Ra foi calculada por meio da expressão (6). A eficiência para amostras de $^{210}\text{PbCrO}_4$ foi realizada segundo MOREIRA (1993) por meio da medida beta total de um padrão de referência de ^{210}Pb , com concentração de atividade conhecida. Assim, a eficiência beta do ^{210}Pb também foi calculada por meio da expressão (6).

$$EF\beta (^{228}\text{Ra ou } ^{210}\text{Pb}) = \frac{Rn - Bg}{A_p(^{228}\text{Ra ou } ^{210}\text{Pb}).60.RQ} \quad (6)$$

Onde:

$EF\beta (^{228}\text{Ra ou } ^{210}\text{Pb})$ = eficiência de contagem beta para medida de ^{228}Ra ou ^{210}Pb , em cps dps^{-1}

Rn = taxa de contagem beta do padrão, em cpm

Bg = taxa de contagem do background beta do detector, em cpm

$A_p (^{228}\text{Ra ou } ^{210}\text{Pb})$ = atividade do padrão de ^{228}Ra ou ^{210}Pb corrigida para a data da medida, em Bq kg^{-1}

RQ = rendimento químico, em kg

3.2.5. Eficiência de contagem alfa para ^{210}Po

A eficiência do detector foi realizada conforme ALENCAR (2008), em que uma fonte padrão eletrodepositada e calibrada de ^{241}Am , com atividade específica de 2600 Bq, foi medida três vezes por 100 segundos. Assim, a eficiência do ^{210}Po para o espectrômetro alfa foi calculada por meio da expressão (7):

$$EF = \frac{Ca}{Ap} \quad (7)$$

Onde:

EF = eficiência de detecção, em cps dps^{-1}

Ca = contagem da amostra, em cps

Ap = atividade nominal da fonte, em dps

O valor médio de eficiência alfa para a medida de ^{210}Po foi de 46,7%.

3.2.6. Determinação dos limites inferiores de detecção para metodologia da determinação de ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po .

Os limites inferiores de detecção – LID, para os radionuclídeos naturais ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po foram determinados realizando o mesmo o procedimento radioquímico das amostras do presente trabalho. O LID foi calculado conforme a expressão (8)

$$LID = \frac{4.66.Sb}{t.RQ.Ef.M} \quad (8)$$

Onde:

LID= Limite inferior de detecção(mBq.L⁻¹)

4,66= Valor tabelado que propõe a existência de um risco pré-determinado de que existe alguma atividade na amostra, podendo existir ou não, com intervalo de confiança de 95%

Sb: Desvio padrão da radiação de fundo do branco do procedimento

t= Tempo de contagem (s)

RQ= Rendimento químico do branco

Ef=Eficiência do sistema de contagem

M= massa da amostra (l)

Os limites inferiores de detecção são apresentados na TAB. 3.1.

Tabela 3.1 - Limite de detecção (LID) para os radionuclídeos analisados em mBq.L⁻¹.

Radionuclídeo	LID (mBq.L ⁻¹)
^{226}Ra	2,2
^{228}Ra	3,7
^{210}Pb	4,9
^{210}Po	3,2

3.2.7. Cálculo da dose efetiva comprometida

As doses efetivas comprometidas devido à ingestão das águas minerais contendo os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po foram determinadas a partir da expressão (9):

$$He = Cn . I . FCD_E \quad (9)$$

Onde:

H_e = dose efetiva comprometida (mSv/a);

C_n = concentração de atividade do radionuclídeo n na água (Bq/l);

I = taxa de ingestão de água, em litros por ano (730 l/a) (WHO, 2004);

FCD_e = fator de conversão de dose efetiva comprometida e dose para osso referente a ingestão do radionuclídeo n.

Os valores dos fatores de conversão de dose por ingestão para os radionuclídeos utilizados no presente trabalho foram retirados das Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica da Comissão Nacional de Energia Nuclear, CNEN-NN-3.01 (CNEN, 2011).

3.2.8. Procedimento experimental para a determinação de elementos por Fluorescência de raios X(EDXRF).

As amostras foram pré-concentradas na proporção de 12,5 vezes em chapa aquecedora e levadas até o Laboratório de amostras Químicas, localizado no Centro de Lasers/ Centro de Química Ambiental (CLA/ CQMA -IPEN). Para o procedimento, utilizou-se um Espectrômetro de Fluorescência de Raios X por Energia Dispersiva EDX-720 Shimadzu, em que os tubos de emissão de raio X são feitos de ródio.

Condicionou-se 400 µl de amostra no porta amostras de polietileno específico e cada amostra foi medida por 40 min em seis ciclos.

A identificação qualitativa dos elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn foi estimada através das intensidades dos raios X característicos, curva de calibração (curva de sensibilidade) para cada elemento usando o padrão AccUTrace™ Reference Standard (Catalog No. CLP-ICV-01-R-5) diluídos em diversas concentrações. A curva foi obtida através da relação intensidade medida e intensidade real do padrão em função de cada elemento, utilizando o software do equipamento.

4. RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1. pH e Temperatura

Na TAB. 4.1 são apresentados os valores de pH, medidos no laboratório, e temperatura *in situ* das águas minerais separados pela estação de cada coleta.

Tabela 4.1: pH e temperatura das amostras de água mineral coletadas

Fontes	Primavera 2015		Verão 2016		Outono 2016		Inverno 2016		Primavera 2016	
	pH	Temp. (°C)	pH	Temp. (°C)	pH	Temp. (°C)	pH	Temp. (°C)	pH	Temp. (°C)
Mayrink 1	5.86	25	5.35	27	-	23	5.57	24	5.51	25
Mayrink 2	5.88	25.5	5.41	27	-	25	5.43	24	5.47	24
Mayrink 3	6.01	25	5.45	27	-	24	5.41	23	5.45	26
D. Isabel	6.67	24	6.12	27	-	23	6.13	23.5	6.27	24
Ernestina	6.81	24	6.29	27	-	23.5	6.35	23	6.57	25
Balneário	7.00	27	6.78	25	-	13	6.72	22	6.67	26
Pousada	-	-	6.49	-	-	24	7.23	13	7.00	25
D. Pedro	6.24	25	5.64	27	-	23	5.59	24	5.72	25
Viotti 1	6.01	25	5.38	27	-	24	5.40	24	5.45	25
Viotti 2	5.83	24.5	5.38	23	-	24	5.35	24	5.50	25
Geiser	7.29	27	7.28	27	-	25	7.18	25	7.13	27
D. Leopoldina	6.44	24	5.88	27	-	22	5.90	24	6.00	24
Hotel Glória	6.41	26	5.96	27	-	-	-	-	6.07	26
Beleza	6.83	24.5	6.48	28	-	24	6.45	23	6.64	25
Venâncio	6.79	26	6.34	29	-	25	6.56	25	6.57	26
D. de Saxe	6.88	24.5	6.23	27	-	23	6.32	24	6.37	25

- Não mensurado

Os valores de pH das águas variaram de 5,35 a 7,29 com a maioria das amostras caracterizadas de ácidas a neutras. A temperatura das águas variou de 22 °C a 29 °C, caracterizando as amostras abaixo de 25 °C como fontes frias e as de 25°C a 33°C como hipotermiais;(Brasil, 1945) apenas as amostras do Gêiser, Hotel Glória e Venâncio podem ser classificadas como hipotermiais em todas as coletas.

Esses valores, após média aritmética, foram comparados aos de Monat (1894) e com os dados publicados pelo DNPM (2014), ambos realizados no Parque das Águas de Caxambu, conforme a TAB. 4.2. Apesar dos dados obtidos no presente trabalho não diferenciarem muito dos do DNPM, há uma variação significativa quanto aos coletados por Monat em 1894.

Tabela 4.2: Dados de pH e temperatura do presente trabalho e valores obtidos por Monat (1894) e DNPM (2014).

Fontes	Presente Trabalho		Monat 1894		DNPM 2014	
	média pH	média temp. (°C)	pH	Temp. (°C)	pH	Temp. (°C)
Mayrink 1	5,57	24,8	-	22	5,74	24
Mayrink 2	5,54	25,1	-	22	5,76	24,5
Mayrink 3	5,58	25	-	22	5,59	25
D. Isabel	6,29	24,3	-	24	6,54	23
Ernestina	6,5	24,5	-	-	6,63	24,5
Balneário	6,8	25	-	-	-	-
Pousada	6,9	25	-	-	-	-
D. Pedro	5,79	24,8	-	22,5	6,05	23
Viotti 1	5,56	25	-	21,5	5,73	23,2
Viotti 2	5,51	24,1	-	21,5	5,73	23,2
Geiser	7,22	26,2	-	-	6,34	27
D. Leopoldina	6,05	24,2	-	23	6,1	22
Hotel Glória	6,14	26	-	-	-	-
Beleza	6,6	24,9	-	21	6,58	23,5
Venâncio	6,56	26,2	-	-	6,65	25
D. de Saxe	6,45	24,7	-	23,5	6,66	23,9

- Dados não publicados.

4.2. Concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po

Nas TAB. 4.3, 4.4 e 4.5 são apresentados, respectivamente, os valores de concentração em mBq.L^{-1} dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb por estação a qual foi realizada a coleta.

Foram obtidos valores de concentrações diferentes em cada estação e para cada fonte, indicando que, apesar das fontes estarem bem próximas umas das outras, a litologia do local tem alta influência nas águas e isso resulta em diferentes concentrações dos radionuclídeos para cada fonte. Segundo o estudo feito em 1998 pela Companhia de Pesquisa de Recursos Minerais - CPRM, esse fato não se dá apenas pela composição do solo, mas pela profundidade a qual a fonte chega até sua captação, assim como o tempo da interação água-solo até a água aflorar na superfície. (CPRM, 1998)

Foi possível identificar uma concentração maior de ^{226}Ra em comparação ao ^{210}Pb em quase todas as amostras, sendo as fontes Ernestina, Beleza e Venâncio que apresentaram os maiores valores de concentração desses radionuclídeos. O gêiser também apresentou valores elevados de concentração se comparado às fontes

do parque, porém a avaliação deste deve ser feita separadamente, pois seu uso, diferentemente das fontes, é somente externo, não sendo recomendado no parque a ingestão dessa água.

Nas seis amostragens realizadas entre o outono de 2015 e a primavera de 2016, os valores de ^{226}Ra variaram de $73 \pm 3 \text{ mBq.L}^{-1}$ a $6088 \pm 584 \text{ mBq.L}^{-1}$, de $34 \pm 4 \text{ mBq.L}^{-1}$ a $6019 \pm 542 \text{ mBq.L}^{-1}$ para o ^{228}Ra ($8777 \pm 834 \text{ mBq.L}^{-1}$ na amostra do gêiser, que é avaliado separadamente) e os de ^{210}Pb de $23 \pm 1 \text{ mBq.L}^{-1}$ a $365 \pm 33 \text{ mBq.L}^{-1}$ (539 mBq.L^{-1} na amostra do gêiser).

Ao comparar os valores de concentração de ^{226}Ra com o valor máximo permitido do Anexo IX da portaria 2.914 do Ministério da saúde (MS-2914, 2011), que é de 1 Bq.L^{-1} , observa-se que as fontes D. Ernestina, Beleza e Venâncio ultrapassam esse valor em todas as coletas, e a fonte D. Isabel em apenas uma coleta.

Ao comparar os valores de concentração de ^{228}Ra com o valor máximo permitido do mesmo anexo, que é de $0,1 \text{ Bq.L}^{-1}$, nota-se que todas as fontes excederam esse valor, salvo algumas coletas da Viotti 1, Viotti 2 e D. Isabel. Também em quase totalidade, as fontes ultrapassam o valor máximo estipulado pela United States Environmental Protection Agency (USEPA) de 185 mBq.L^{-1} para a soma das concentrações de ^{226}Ra e ^{228}Ra (EPA, 1991).

Tabela 4.3 - Valores de concentração de atividade (C) de ²²⁶Ra expressos em mBq.L⁻¹ e o desvio padrão (DV) para cada estação.

Fontes	Outono 2015		Primavera 2015		Verão 2016		Outono 2016		Inverno 2016		Primavera 2016	
	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV
Mayrink 1	104,6	16,6	129,9	3,7	88,5	1,4	73,4	3,0	166,7	5,0	149,0	2,2
Mayrink 2	197,6	1,2	136,2	0,2	165,5	13,2	189,3	43,0	150,8	2,4	160,9	17,7
Mayrink 3	100,2	16,5	119,8	15,0	85,9	10,0	84,2	7,2	119,2	18,0	131,3	10,2
D. Isabel	1175,6	56,6	539,4	48,5	828,0	83,2	740,8	68,5	744,1	79,0	906,4	81,6
D. Ernestina	3831,8	344,9	2656,0	212,5	2682,9	241,5	2693,7	6,8	3574,7	218,8	3241,3	361,2
Balneário	114,0	10,3	103,4	9,3	100,1	11,0	103,4	9,9	121,3	3,5	115,9	2,2
Pousada	-	-	16,1	2,0	3,9	0,1	4,6	1,4	48,9	5,9	<LID	-
D. Pedro	138,1	12,7	101,3	11,4	118,8	13,0	127,2	15,3	152,5	20,3	173,4	12,6
Viotti 1	120,6	12,4	141,7	14,0	110,5	14,8	104,8	9,6	124,4	17,4	143,2	20,7
Viotti 2	141,9	12,8	123,8	13,4	86,1	8,7	114,4	12,4	124,2	14,9	112,1	10,1
Geiser	3491,0	77,5	2814,7	63,7	2054,7	231,8	1709,5	152,0	2788,4	306,7	2315,6	83,4
D. Leopoldina	216,0	24,0	129,6	11,0	100,6	8,4	97,2	1,7	129,9	7,2	149,1	16,2
Hotel Glória	823,0	74,1	727,5	80,0	527,4	54,2	-	-	-	-	843,6	60,7
Beleza	4421,9	202,4	3114,7	308,4	2828,9	282,9	3035,2	179,9	3913,3	200,5	3209,0	265,9
Venâncio	6087,6	584,4	3279,7	295,2	3735,0	336,1	3012,7	343,2	4008,5	360,8	5780,6	635,9
D. de Saxe	200,2	18,0	225,0	20,2	166,2	10,7	192,0	0,8	218,3	0,1	234,6	28,2

<LID : Menor que o limite inferior de detecção.

- : Não mensurado

.Tabela 4.4 - Valores de concentração de atividade (C) de ²²⁸Ra expressos em mBq.L⁻¹ e o desvio padrão (DV) para cada estação.

Fontes	Outono 2015		Primavera 2015		Verão 2016		Outono 2016		Inverno 2016		Primavera 2016	
	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV
Mayrink 1	415,6	3,5	320,7	2,8	379,1	19,1	226,3	22,1	352,8	3,6	205,3	5,2
Mayrink 2	1005,5	65,9	632,9	23,6	472,9	4,9	499,5	32,7	505,4	7,7	544,4	18,1
Mayrink 3	360,2	17,0	391,9	23,0	199,4	17,7	251,8	15,1	155,1	17,1	134,0	17,1
D. Isabel	289,1	24,7	362,0	43,9	65,5	2,1	179,8	9,6	239,0	12,8	< LID	-
D. Ernestina	6018,8	541,7	3334,1	154,5	3891,5	129,4	3086,8	276,5	3101,9	269,9	3223,9	147,0
Balneário	631,0	7,3	347,9	37,4	367,4	15,4	340,0	37,0	440,3	7,9	366,6	8,9
Pousada	-	-	57,2	22,7	59,5	5,1	60,7	10,5	140,0	14,7	< LID	-
D. Pedro	267,4	25,4	154,3	16,0	109,5	0,5	206,5	2,2	126,5	17,7	143,4	11,9
Viotti 1	242,1	23,0	34,0	4,0	87,1	4,1	122,0	14,4	100,1	8,7	88,9	12,6
Viotti 2	166,7	15,8	66,8	7,0	172,4	20,0	100,1	8,2	131,0	11,4	118,8	12,4
Geiser	8777,2	833,8	4829,1	241,5	4200,2	99,1	5284,1	322,9	5588,5	486,2	4978,5	115,7
D. Leopoldina	206,2	19,6	129,5	16,0	113,4	3,1	175,9	13,2	149,0	7,0	101,5	13,4
Hotel Glória	220,2	20,9	< LID	-	174,0	66,1	-	-	-	-	< LID	-
Beleza	3935,7	63,0	2309,8	181,2	2484,8	261,3	1860,6	230,7	1007,8	32,2	2221,9	236,6
Venâncio	3996,0	391,6	1878,7	186,0	1439,1	182,6	2096,8	188,7	2199,6	140,9	2442,9	272,9
D. de Saxe	739,2	5,2	319,3	38,0	392,4	31,5	390,3	0,7	374,9	20,0	318,5	12,0

<LID : Menor que o limite inferior de detecção.

- : Não mensurado

Tabela 4.5 - Valores de concentração de atividade (C) de ²¹⁰Pb expressos em mBq.L⁻¹ e o desvio padrão (DV) para cada estação.

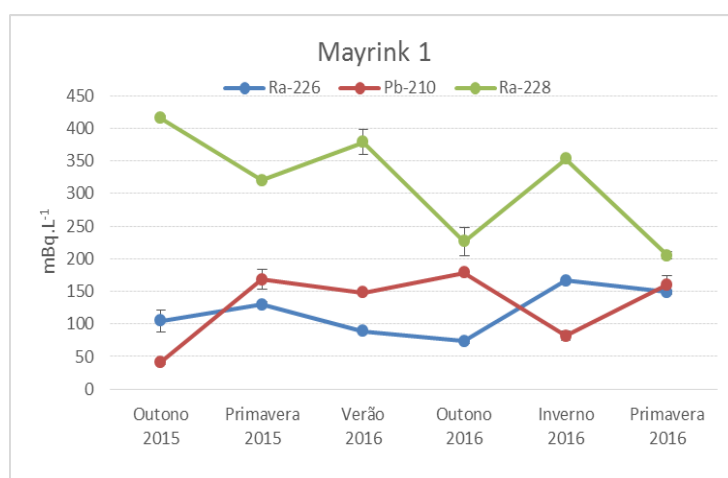
Fontes	Outono 2015		Primavera 2015		Verão 2016		Outono 2016		Inverno 2016		Primavera 2016	
	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV	C mBq.L ⁻¹	DV
Mayrink 1	41,4	3,7	168,3	15,1	148,4	0,0	178,6	2,2	81,5	7,0	160,0	14,4
Mayrink 2	162,6	14,6	90,3	8,1	152,1	3,0	109,9	9,9	91,2	0,5	126,3	11,4
Mayrink 3	154,6	13,9	180,0	16,2	149,6	2,9	180,9	11,8	165,5	6,1	162,4	14,6
D. Isabel	94,2	8,5	41,6	3,7	117,1	15,2	59,1	5,3	48,5	0,8	107,5	9,7
D. Ernestina	306,7	27,6	311,4	28,0	280,7	28,5	273,3	24,9	279,3	14,9	308,7	27,8
Balneário	73,9	6,7	19,5	1,8	22,8	3,1	32,0	2,9	18,1	1,1	15,7	1,4
Pousada	-	-	<LID	-	<LID	-	13,8	1,4	14,0	3,3	19,2	1,4
D. Pedro	131,2	14,5	106,9	9,6	107,5	6,0	161,4	14,1	124,6	7,6	157,8	14,2
Viotti 1	162,4	14,6	90,2	8,1	184,8	18,4	203,7	19,0	181,8	19,0	148,4	13,4
Viotti 2	153,5	9,8	79,0	1,1	136,4	3,6	231,1	7,5	214,0	7,7	111,0	10,0
Geiser	387,7	34,9	538,8	48,5	514,9	22,7	293,0	26,4	313,9	28,2	428,5	46,4
D. Leopoldina	23,6	2,5	22,9	1,3	23,2	2,6	46,9	5,7	26,1	2,4	23,1	3,6
Hotel Glória	56,1	5,0	93,4	4,7	109,2	6,2	-	-	-	-	95,4	7,5
Beleza	328,5	29,6	240,0	21,6	150,8	13,5	357,1	32,1	288,0	25,9	365,1	32,9
Venâncio	282,6	25,4	289,4	26,0	160,9	13,4	186,2	16,7	173,6	15,6	249,6	22,5
D. de Saxe	71,6	6,4	24,1	2,2	27,1	2,4	59,6	5,3	53,6	4,8	26,1	2,4

<LID : Menor que o limite inferior de detecção.

- Não mensurado

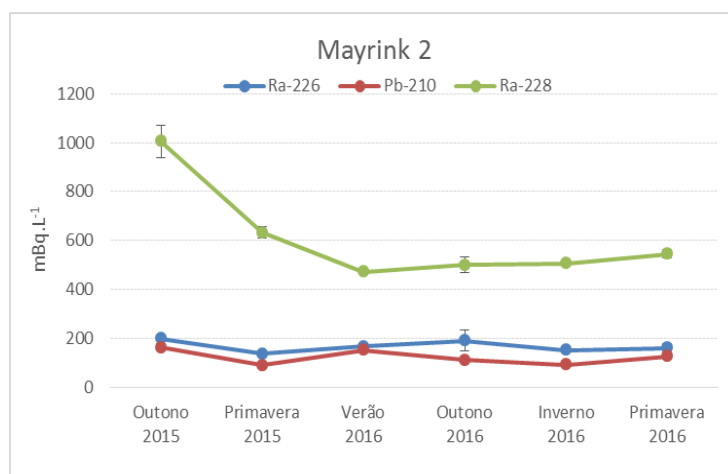
Para uma melhor visualização e interpretação dos valores de concentração, adotou-se o uso de gráficos para o acompanhamento da variação sazonal desses valores, conforme as FIG. 4.1 a 4.16. Nestes gráficos os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb foram plotados juntos permitindo uma avaliação individual das concentrações assim como a avaliação em conjunto dos radionuclídeos ^{226}Ra e ^{210}Pb , pelo fato de pertencerem a mesma série de decaimento do ^{238}U .

Figura 4.1 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



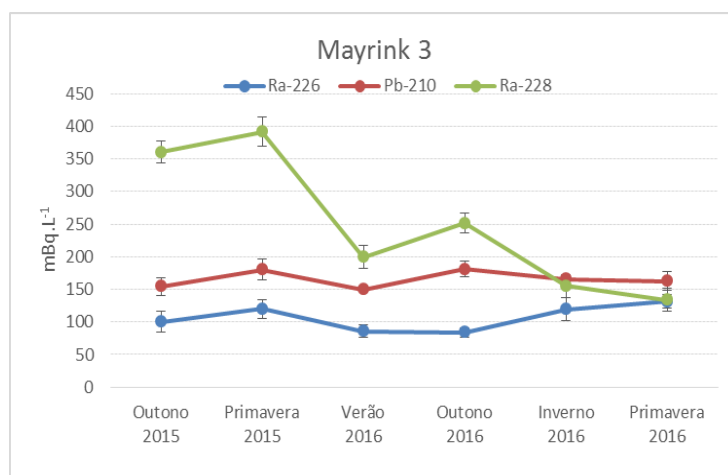
A maior concentração determinada na fonte Mayrink 1 de ^{228}Ra foi de $416 \pm 3 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $167 \pm 5 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de inverno de 2016 e de ^{210}Pb de $179 \pm 2 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2016.

Figura 4.2 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



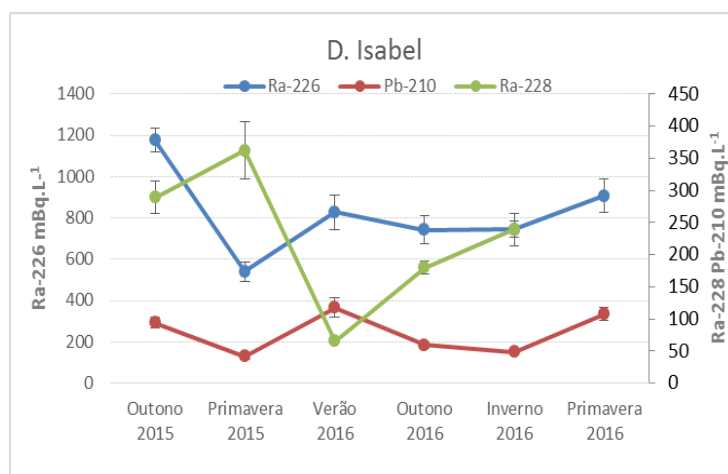
A maior concentração determinada na fonte Mayrink 2 de ^{228}Ra foi de $1005 \pm 66 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $198 \pm 1 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $163 \pm 15 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015.

Figura 4.3 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



A maior concentração determinada na fonte Mayrink 3 de ^{228}Ra foi de $392 \pm 23 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2015, de ^{226}Ra foi de $131 \pm 10 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016 e de ^{210}Pb de $181 \pm 12 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2016.

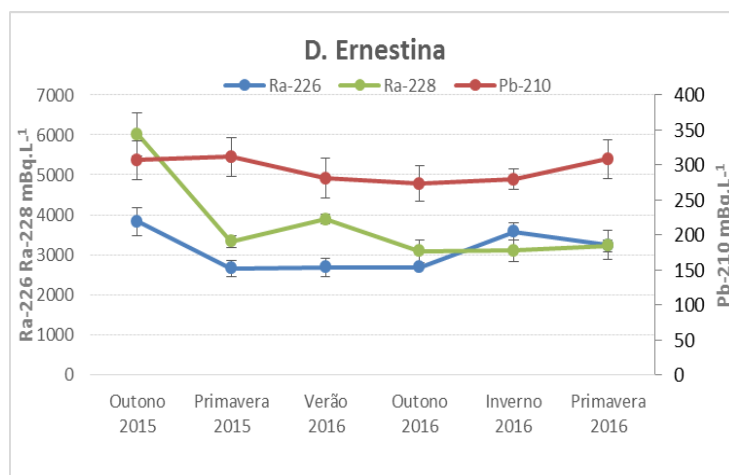
Figura 4.4 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



A maior concentração determinada na fonte D. Isabel de ^{228}Ra foi de $362 \pm 44 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2015, de ^{226}Ra foi de $1176 \pm 57 \text{ mBq.L}^{-1}$

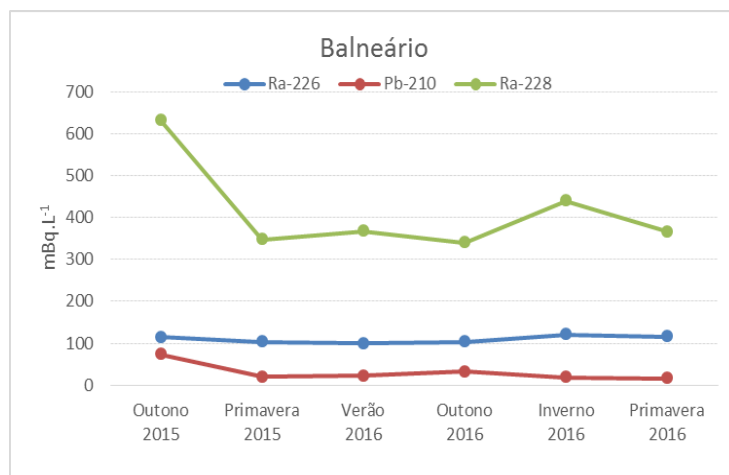
na coleta de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $117 \pm 15 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de verão de 2016.

Figura 4.5 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



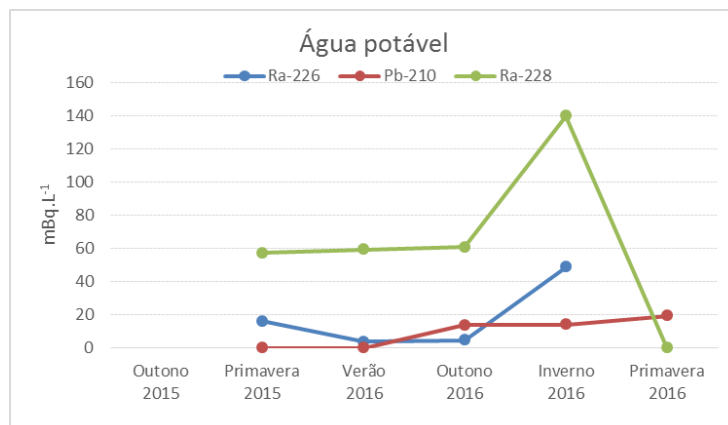
A maior concentração determinada na fonte D. Ernestina de ^{228}Ra foi de $6019 \pm 542 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $3832 \pm 345 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $311 \pm 28 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2015.

Figura 4.6 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



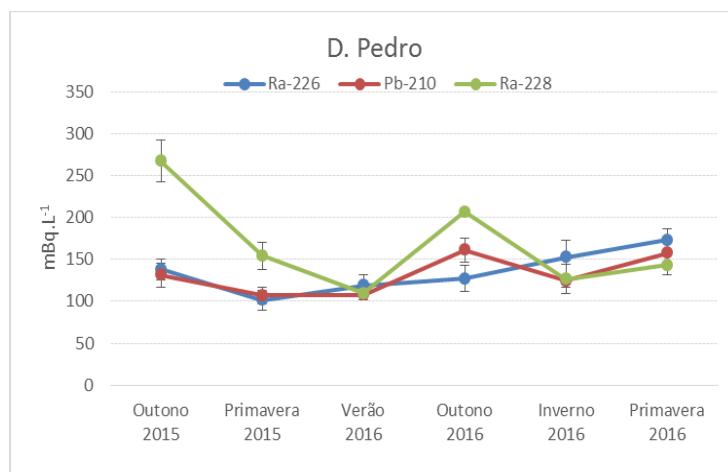
A maior concentração determinada no Balneário de ^{228}Ra foi de $631 \pm 7 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $121 \pm 4 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de inverno de 2016 e de ^{210}Pb de $74 \pm 7 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015.

Figura 4.7 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



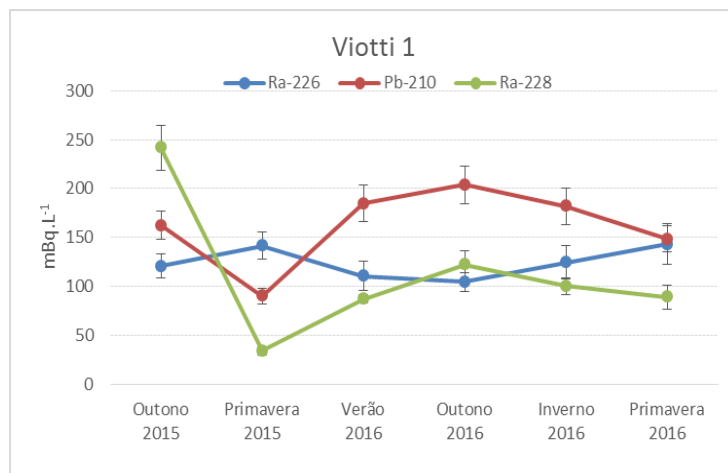
A maior concentração determinada na água potável de ^{228}Ra foi de $140 \pm 15 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de inverno de 2016, de ^{226}Ra foi de $49 \pm 6 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de inverno de 2016 e de ^{210}Pb de $19 \pm 1 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016. Não foi realizada coleta de água potável no outono de 2015.

Figura 4.8 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



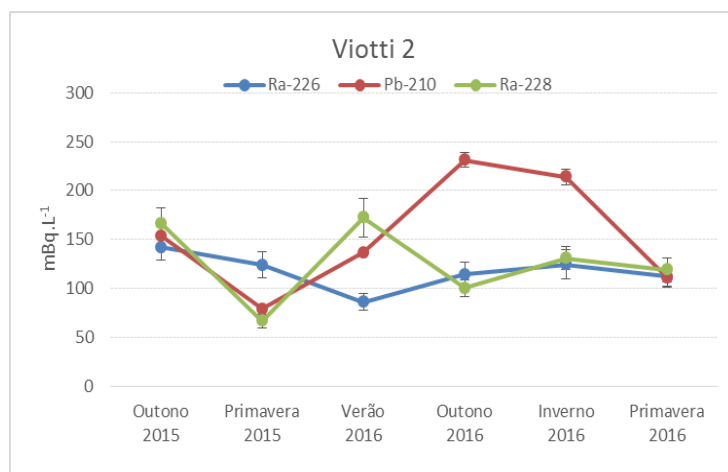
A maior concentração determinada na fonte D. Pedro de ^{228}Ra foi de $267 \pm 5 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $173 \pm 13 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016 e de ^{210}Pb de $161 \pm 14 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2016.

Figura 4.9 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



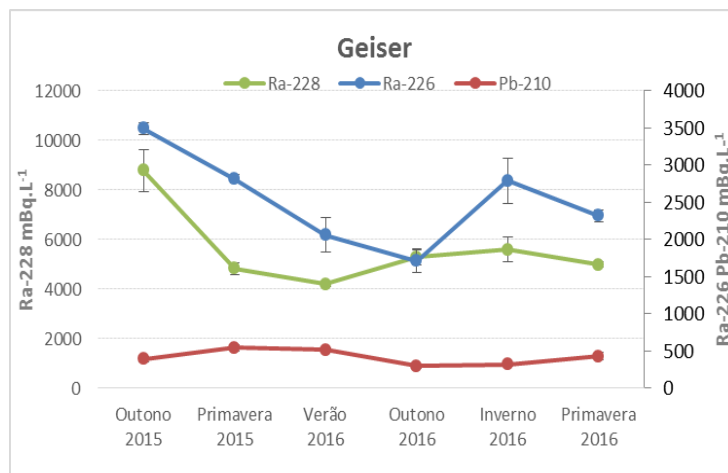
A maior concentração determinada na fonte Viotti 1 de ^{228}Ra foi de $242 \pm 23 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $143 \pm 21 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016 e de ^{210}Pb de $204 \pm 19 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2016.

Figura 4.10 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



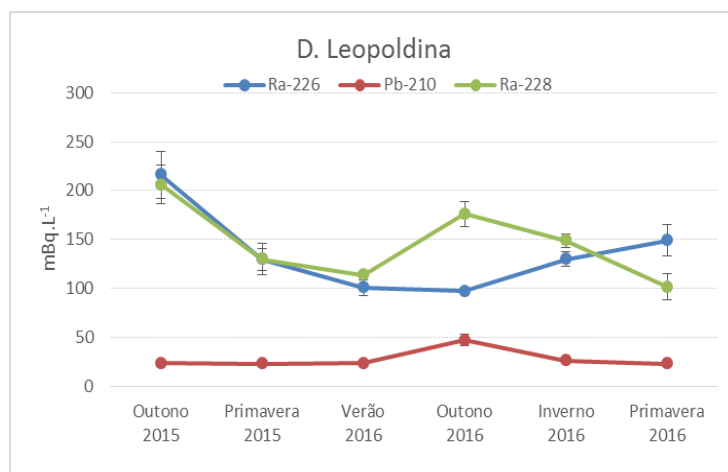
A maior concentração determinada na fonte Viotti 2 de ^{228}Ra foi de $167 \pm 16 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $142 \pm 13 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $231 \pm 7 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2016.

Figura 4.11 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



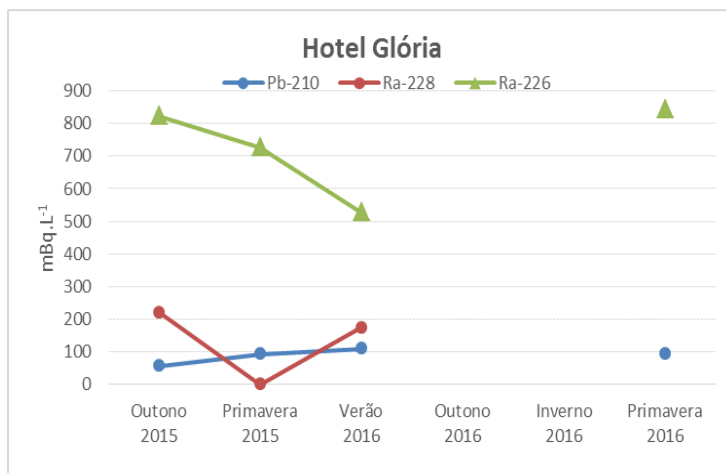
A maior concentração determinada no Geiser de ^{228}Ra foi de $8777 \pm 834 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $3491 \pm 78 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $539 \pm 48 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2015.

Figura 4.12 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



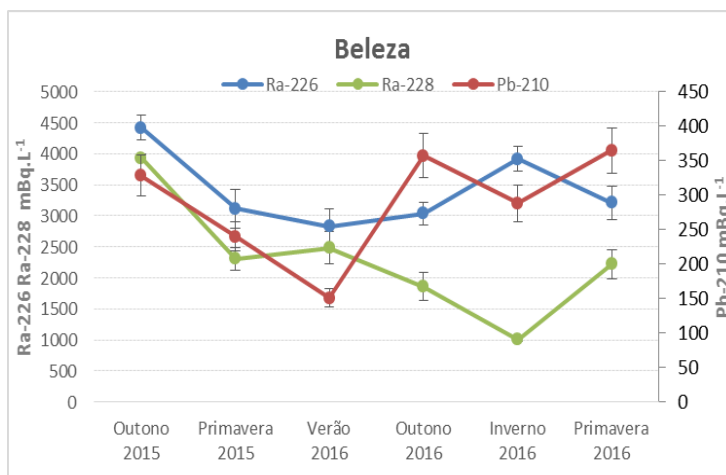
A maior concentração determinada na fonte D. Leopoldina de ^{228}Ra foi de $206 \pm 20 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $216 \pm 24 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $47 \pm 6 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2016.

Figura 4.13- Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



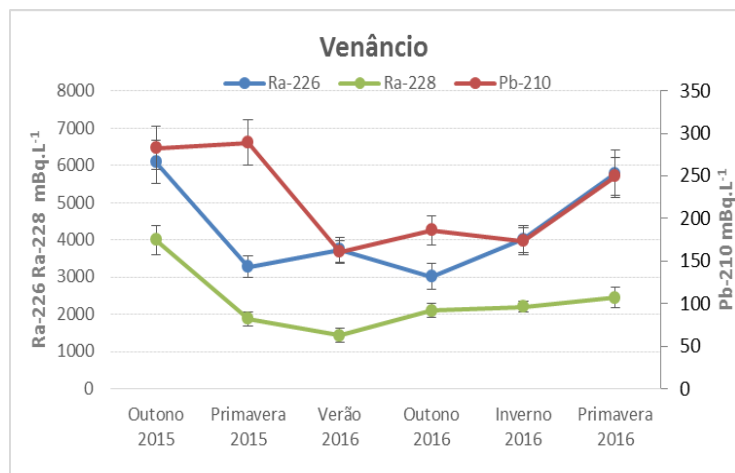
A maior concentração determinada na fonte do Hotel Glória de ^{228}Ra foi de $220 \pm 21 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $844 \pm 61 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016 e de ^{210}Pb de $109 \pm 6 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de verão de 2016. A fonte do Hotel Glória esteve em manutenção no período das coletas de outono e inverno de 2016.

Figura 4.14 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



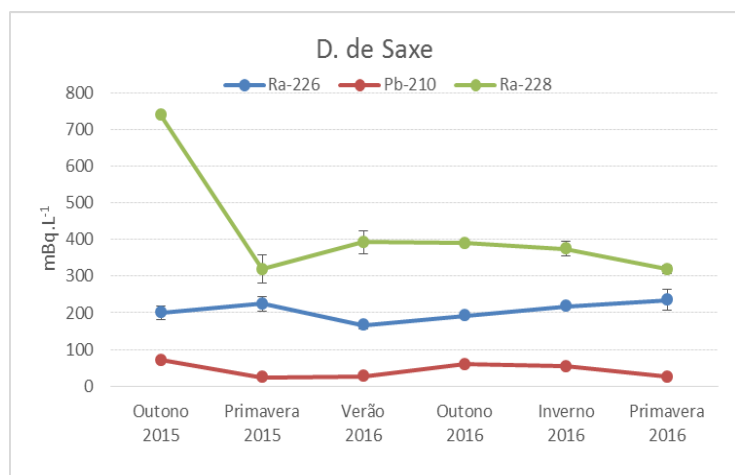
A maior concentração determinada na fonte Beleza de ^{228}Ra foi de $3936 \pm 63 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $4422 \pm 202 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de de outono de 2015 e de ^{210}Pb de $365 \pm 33 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016.

Figura 4.15 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .



A maior concentração determinada na fonte Venâncio de ^{228}Ra foi de $3396 \pm 392 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, para o ^{226}Ra foi de $6088 \pm 584 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015 e para o ^{210}Pb de $289 \pm 26 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016.

Figura 4.16 - Valores de concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb de todas as coletas em mBq.L^{-1} .

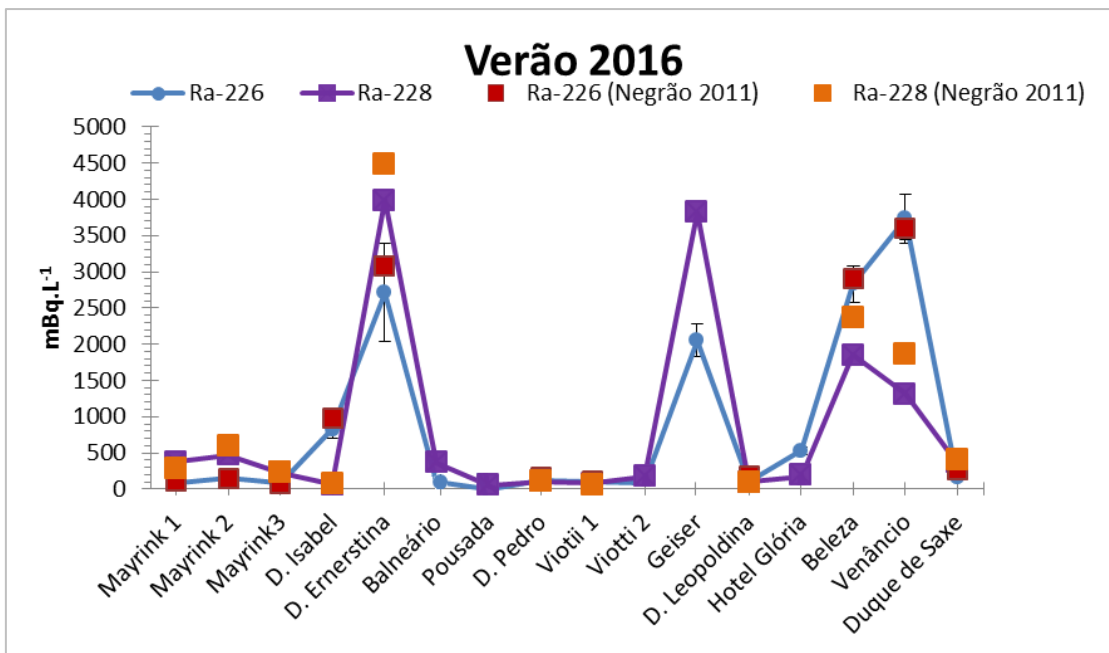


A maior concentração determinada na fonte D. de Saxe de ^{228}Ra foi de $739 \pm 5 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015, de ^{226}Ra foi de $235 \pm 28 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de primavera de 2016 e de ^{210}Pb de $72 \pm 6 \text{ mBq.L}^{-1}$ na coleta de outono de 2015.

Comparando os resultados obtidos no presente trabalho para os radionuclídeos ^{226}Ra e ^{228}Ra com os valores de Negrão (2012), que determinou os

mesmos radionuclídeos e utilizou mesma metodologia radioquímica, na estação do verão em ambos os trabalhos, observa-se que a maioria dos resultados são muito similares indicando pouca variação da concentração de atividade dos radionuclídeos ^{226}Ra e ^{228}Ra ao longo dos anos, FIG. 4.17.

Figura 4.17 - Concentrações de ^{226}Ra e ^{228}Ra em mBq L^{-1} da coleta do verão de 2016 comparados com os de Negrão (2012).



As concentrações de atividade do ^{210}Po desse trabalho só foram determinadas na coleta do verão de 2016. Assim, para analisar o radionuclídeo quanto aos seus níveis de concentração, os valores obtidos são apresentados na TAB. 4.6 em conjunto com os valores obtidos por Santos (2018) e Wakasugi (2018), que analisaram o referido radionuclídeo nos parques das águas de Cambuquira e Marimbeiro e Lambari e Águas de Contendas, respectivamente, parques também do Circuito das Águas de Minas Gerais.

Apesar dos valores de concentração de atividade de ^{210}Po estarem abaixo dos valores determinados para os outros radionuclídeos estudados no presente trabalho, observa-se que estes, em sua grande maioria, estão acima dos valores estabelecidos por Santos (2018) e Wakasugi (2018) em seus trabalhos, assim como para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb .

Tabela 4.6. Concentração de atividade de ^{210}Po do presente trabalho e valores obtidos de ^{210}Po por Wakasugi (2018) e Santos (2018).

Presente trabalho	Média e DV mBq.L ⁻¹	Wakasugi (2018)	Média e DV mBq.L ⁻¹	Santos (2018)	Média e DV mBq.L ⁻¹
Mayrink 1	103 ± 3	Ferruginosa	9,7 ± 2,2	Marimbeiro 1	8,2 ± 0,2
Mayrink 2	80 ± 4	Magnesiana	13 ± 1,3	Marimbeiro 2	6,5 ± 0,2
Mayrink 3	91 ± 5	Gasosa I	9,5 ± 3,2	Marimbeiro 3	7,5 ± 0,5
D. Isabel	18 ± 1	Gasosa II	7,2 ± 1,3	Gasosa I	6,2 ± 0,4
Ernestina	99 ± 4	Alcalina	6,5 ± 1,4	Gasosa II	5,7 ± 0,2
Balneário	7,4 ± 1,2	Magnesiana	12,1 ± 2,4	Gasosa III	6,7 ± 0,02
D. Pedro	66 ± 3	Gasosa	8,4 ± 3,4	Litinida	11 ± 0,5
Viotti 1	79 ± 8	Lig. Gasosa	8,1 ± 0,9	Férrea	32,2 ± 0,8
Viotti 2	90 ± 4	Picante	8,2 ± 0,9	Potável	<LID
D.Leopoldina	12 ± 1	Externa	7,1 ± 1,9		
Beleza	55 ± 2	Ferruginosa	7,5 ± 0,9		
Venâncio	75 ± 3	Potável -AC	14,1 ± 3,4		
D. de Saxe	16 ± 1	Potável -Lambari	3,3 ± 0,4		
Geiser	61 ± 3				
Hotel Glória	83 ± 3				
Potável	<LID				
Intervalo	7,4 - 103		3,3 - 14,1		5,7-32,2

Na amostragem realizada para o presente trabalho, os valores de ^{210}Po variaram de $7,4 \pm 1$ mBq.L⁻¹ a 103 ± 3 mBq.L⁻¹, com a água potável apresentando valor de concentração abaixo do limite inferior de detecção, $3,2$ mBq.L⁻¹.

4.3. Dose efetiva comprometida

A dose efetiva comprometida é a dose efetiva comprometida utilizada para expressar a sensibilidade e estabelecer os limites à exposição a radiação no corpo humano e seus órgãos. Foi estimada a dose efetiva comprometida para todos os valores de concentração conforme a TAB. 4.7, 4.8 e 4.9. Nesse caso, excluiu-se as amostras do gêiser, pois os fatores de conversão são para ingestão conforme a posição regulatória CNEN 3.01/001:2011 (CNEN 2011).

As doses efetivas comprometidas para os indivíduos do público de até 15 anos (He1) variaram de $0,080 \pm 0,005$ mSv.a⁻¹ a $6,665 \pm 0,639$ mSv.a⁻¹ para os valores de ^{226}Ra , de $0,14 \pm 0,016$ mSv.a⁻¹ a $25,044 \pm 2,253$ mSv.a⁻¹ para os valores de ^{228}Ra e de $0,006 \pm 0,001$ mSv.a⁻¹ a $0,959 \pm 0,086$ mSv.a⁻¹ para os valores de

^{210}Pb . As doses efetivas comprometidas para os indivíduos do público adulto (He2) variaram de $0,018 \pm 0,001 \text{ mSv.a}^{-1}$ a $1,244 \pm 0,012 \text{ mSv.a}^{-1}$ para os valores de ^{226}Ra , de $0,017 \pm 0,002 \text{ mSv.a}^{-1}$ a $3,031 \pm 0,272 \text{ mSv.a}^{-1}$ para os valores de ^{228}Ra e de $0,011 \pm 0,001 \text{ mSv.a}^{-1}$ a $0,179 \pm 0,016 \text{ mSv.a}^{-1}$ para os valores de ^{210}Pb .

Tabela 4.7 - Valores de dose efetiva, em mSv.a^{-1} , para os radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nas coletas de outono/2015 e primavera/2015 devido a ingestão das águas minerais, para os indivíduos do público de até 15 anos (He1) e público adulto (He2).

Fontes	Ra-226	Ra-226	Ra-228	Ra-228	Pb-210	Pb-210	
	He1 (mSv.a^{-1})	He2 (mSv.a^{-1})	He1 (mSv.a^{-1})	He2 (mSv.a^{-1})	He1 (mSv.a^{-1})	He2 (mSv.a^{-1})	
Outono 2015	Mayrink 1	0,11	0,02	1,73	0,21	0,11	0,02
	Mayrink 2	0,22	0,04	4,18	0,51	0,43	0,08
	Mayrink 3	0,11	0,02	1,50	0,18	0,41	0,08
	D. Isabel	1,29	0,24	1,20	0,15	0,25	0,05
	D. Ernestina	4,20	0,78	25,04	3,03	0,81	0,15
	Balneário	0,12	0,02	2,63	0,32	0,19	0,04
	Pousada	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	D. Pedro	0,15	0,03	1,11	0,13	0,34	0,07
	Viotti 1	0,13	0,02	1,01	0,12	0,43	0,08
	Viotti 2	0,16	0,03	0,69	0,08	0,40	0,08
	D. Leopoldina	0,24	0,04	0,86	0,10	0,06	0,01
	Hotel Glória	0,90	0,17	0,92	0,11	0,15	0,03
	Beleza	4,84	0,90	16,38	1,98	0,86	0,17
	Venâncio	6,67	1,24	16,63	2,01	0,74	0,14
D. de Saxe	0,22	0,04	3,08	0,37	0,19	0,04	
Primavera 2015	Mayrink 1	0,14	0,03	1,33	0,16	0,44	0,08
	Mayrink 2	0,15	0,03	2,63	0,32	0,24	0,05
	Mayrink 3	0,13	0,02	1,63	0,20	0,47	0,09
	D. Isabel	0,59	0,11	1,51	0,18	0,11	0,02
	D. Ernestina	2,91	0,54	13,87	1,68	0,82	0,16
	Balneário	0,11	0,02	1,45	0,18	0,05	0,01
	Pousada	0,02	0,00	0,24	0,03	ND	ND
	D. Pedro	0,11	0,02	0,64	0,08	0,28	0,05
	Viotti 1	0,16	0,03	0,14	0,02	0,24	0,05
	Viotti 2	0,14	0,03	0,28	0,03	0,21	0,04
	D. Leopoldina	0,14	0,03	0,54	0,07	0,06	0,01
	Hotel Glória	0,80	0,15	ND	ND	0,25	0,05
	Beleza	3,41	0,64	9,61	1,16	0,63	0,12
	Venâncio	3,59	0,67	7,82	0,95	0,76	0,15
D. de Saxe	0,25	0,05	1,33	0,16	0,06	0,01	

ND – Não determinado

Tabela 4.8- Valores de dose efetiva, em mSv.a⁻¹, para os radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb nas coletas de verão/2016 e outono/2016 devido a ingestão das águas minerais, para os indivíduos público de até 15 anos (He1) e público adulto (He2).

Fontes	Ra-226	Ra-226	Ra-228	Ra-228	Pb-210	Pb-210	
	He2 (mSv.a ⁻¹)	He1 (mSv.a ⁻¹)	He2 (mSv.a ⁻¹)	He1 (mSv.a ⁻¹)	He2 (mSv.a ⁻¹)	He1 (mSv.a ⁻¹)	
Verão 2016	Mayrink 1	0,10	0,02	1,58	0,19	0,39	0,07
	Mayrink 2	0,18	0,03	1,97	0,24	0,40	0,08
	Mayrink 3	0,09	0,02	0,83	0,10	0,39	0,08
	D. Isabel	0,91	0,17	0,27	0,03	0,31	0,06
	D. Ernestina	2,94	0,55	16,19	1,96	0,74	0,14
	Balneário	0,11	0,02	1,53	0,19	0,06	0,01
	Pousada	0,00	0,00	0,25	0,03	ND	ND
	D. Pedro	0,13	0,02	0,46	0,06	0,28	0,05
	Viotti 1	0,12	0,02	0,36	0,04	0,49	0,09
	Viotti 2	0,09	0,02	0,72	0,09	0,36	0,07
	D. Leopoldina	0,11	0,02	0,47	0,06	0,06	0,01
	Hotel Glória	0,58	0,11	0,72	0,09	0,29	0,06
	Beleza	3,10	0,58	10,34	1,25	0,40	0,08
	Venâncio	4,09	0,76	5,99	0,72	0,42	0,08
D. de Saxe	0,18	0,03	1,63	0,20	0,07	0,01	
Outono 2016	Mayrink 1	0,08	0,02	0,94	0,11	0,47	0,09
	Mayrink 2	0,21	0,04	2,08	0,25	0,29	0,06
	Mayrink 3	0,09	0,02	1,05	0,13	0,48	0,09
	D. Isabel	0,81	0,15	0,75	0,09	0,16	0,03
	D. Ernestina	2,95	0,55	12,84	1,55	0,72	0,14
	Balneário	0,11	0,02	1,41	0,17	0,08	0,02
	Pousada	0,01	0,00	0,25	0,03	0,04	0,01
	D. Pedro	0,14	0,03	0,86	0,10	0,42	0,08
	Viotti 1	0,11	0,02	0,51	0,06	0,54	0,10
	Viotti 2	0,13	0,02	0,42	0,05	0,61	0,12
	D. Leopoldina	0,11	0,02	0,73	0,09	0,12	0,02
	Hotel Glória	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	Beleza	3,32	0,62	7,74	0,94	0,94	0,18
	Venâncio	3,30	0,62	8,72	1,06	0,49	0,09
D. de Saxe	0,21	0,04	1,62	0,20	0,16	0,03	

ND – Não determinado

Tabela 4.9 - Valores de dose efetiva, em mSv.a⁻¹, para os radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb nas coletas de inverno/2016 e primavera/2016 devido a ingestão das águas minerais, para o público de até 15 anos (He1) e público adulto (He2).

Fontes	Ra-226	Ra-226	Ra-228	Ra-228	Pb-210	Pb-210	
	He2 (mSv.a ⁻¹)	He1 (mSv.a ⁻¹)	He2 (mSv.a ⁻¹)	He1 (mSv.a ⁻¹)	He2 (mSv.a ⁻¹)	He1 (mSv.a ⁻¹)	
Primavera 2016	Mayrink 1	0,18	0,03	1,47	0,18	0,21	0,04
	Mayrink 2	0,17	0,03	2,10	0,25	0,24	0,05
	Mayrink 3	0,13	0,02	0,65	0,08	0,43	0,08
	D. Isabel	0,81	0,15	0,99	0,12	0,13	0,02
	D. Ernestina	3,91	0,73	12,91	1,56	0,73	0,14
	Balneário	0,13	0,02	1,83	0,22	0,05	0,01
	Pousada	0,05	0,01	0,58	0,07	0,04	0,01
	D. Pedro	0,17	0,03	0,53	0,06	0,33	0,06
	Viotti 1	0,14	0,03	0,42	0,05	0,48	0,09
	Viotti 2	0,14	0,03	0,54	0,07	0,56	0,11
	D. Leopoldina	0,14	0,03	0,62	0,08	0,07	0,01
	Hotel Glória	ND	ND	ND	ND	ND	ND
	Beleza	4,29	0,80	4,19	0,51	0,76	0,15
	Venâncio	4,39	0,82	9,15	1,11	0,46	0,09
D. de Saxe	0,24	0,04	1,56	0,19	0,14	0,03	
Inverno 2016	Mayrink 1	0,16	0,03	0,85	0,10	0,42	0,08
	Mayrink 2	0,18	0,03	2,27	0,27	0,33	0,06
	Mayrink 3	0,14	0,03	0,56	0,07	0,43	0,08
	D. Isabel	0,99	0,19	ND	ND	0,28	0,05
	D. Ernestina	3,55	0,66	13,41	1,62	0,81	0,16
	Balneário	0,13	0,02	1,53	0,18	0,04	0,01
	Pousada	ND	ND	ND	ND	0,05	0,01
	D. Pedro	0,19	0,04	0,60	0,07	0,41	0,08
	Viotti 1	0,16	0,03	0,37	0,04	0,39	0,07
	Viotti 2	0,12	0,02	0,49	0,06	0,29	0,06
	D. Leopoldina	0,16	0,03	0,42	0,05	0,06	0,01
	Hotel Glória	0,92	0,17	ND	ND	0,25	0,05
	Beleza	3,51	0,66	9,25	1,12	0,96	0,18
	Venâncio	6,33	1,18	10,17	1,23	0,66	0,13
D. de Saxe	0,26	0,05	1,33	0,16	0,07	0,01	

ND – Não determinado

Para comparação de dose por fonte, os resultados obtidos de dose efetiva comprometida para o público abaixo de 15 anos e o público adulto foram plotados em gráficos, FIG. 4.18 a FIG. 4.29.

Figura 4.18 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público até 15 anos (He1) nas amostras de outono de 2015.

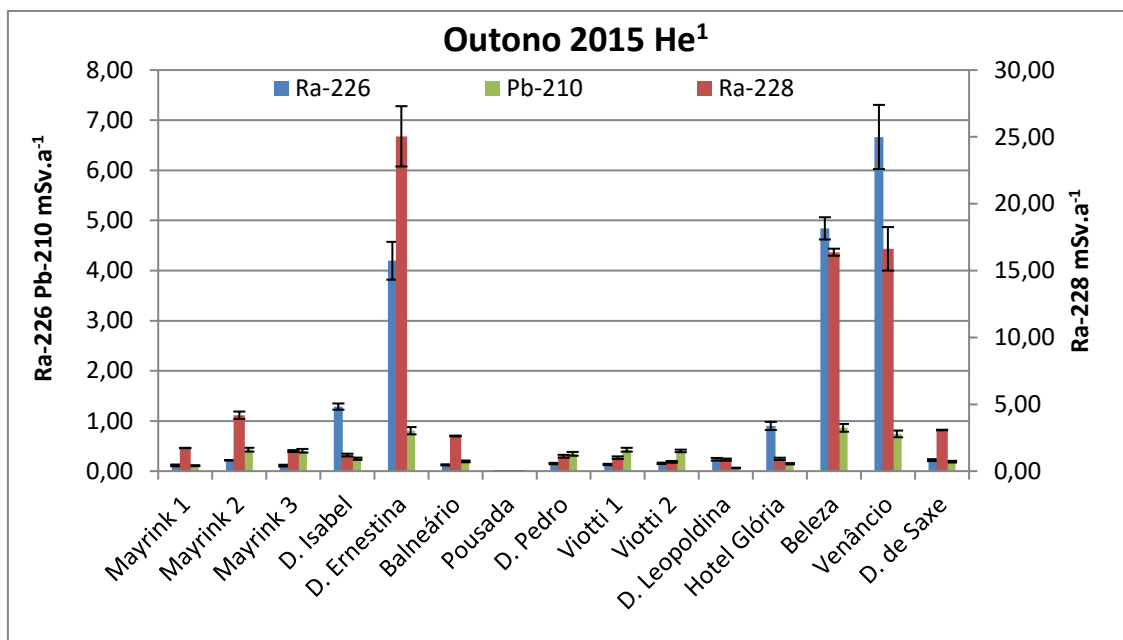


Figura 2 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público adulto (He2) nas amostras de outono de 2015.

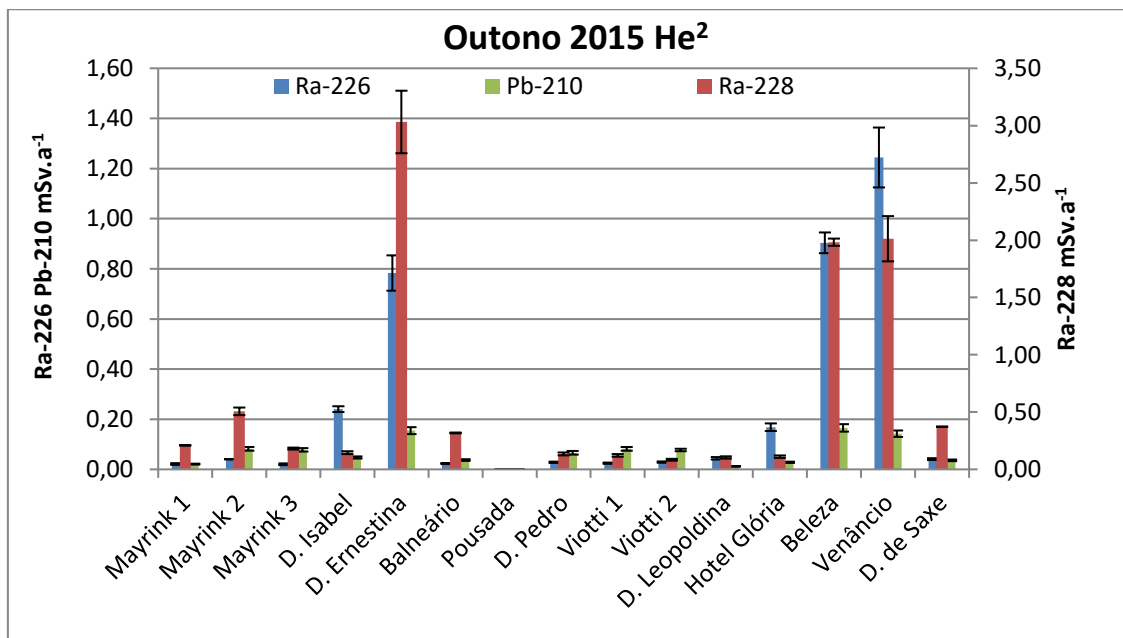


Figura 4.203 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público até 15 anos (He1) nas amostras de primavera de 2015.

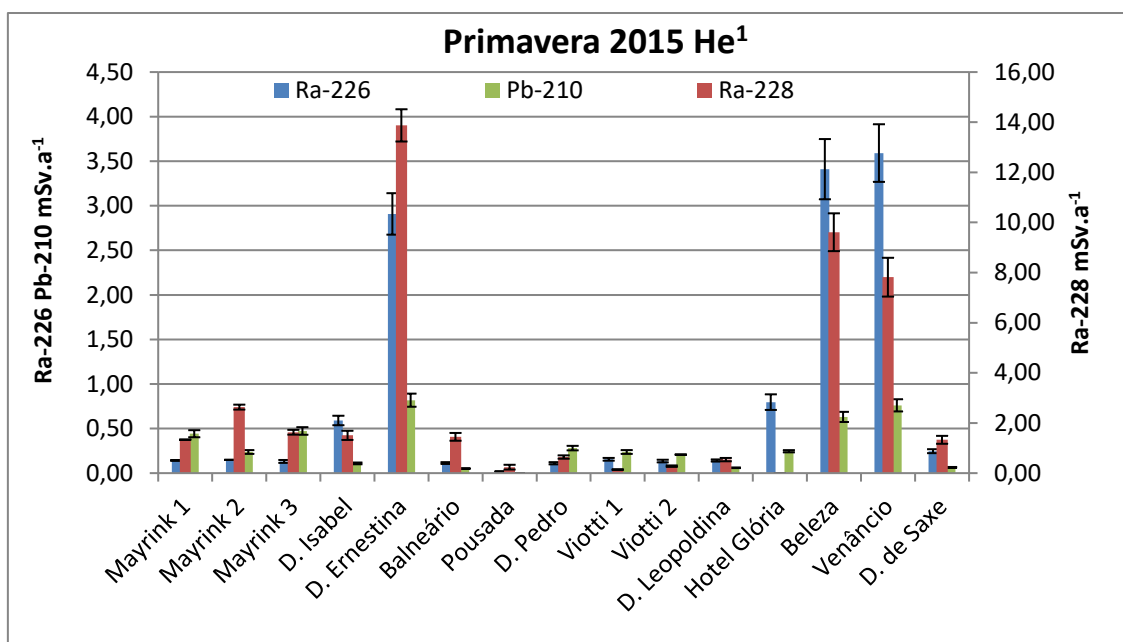


Figura 4.21 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público adulto (He2) nas amostras de primavera de 2015.

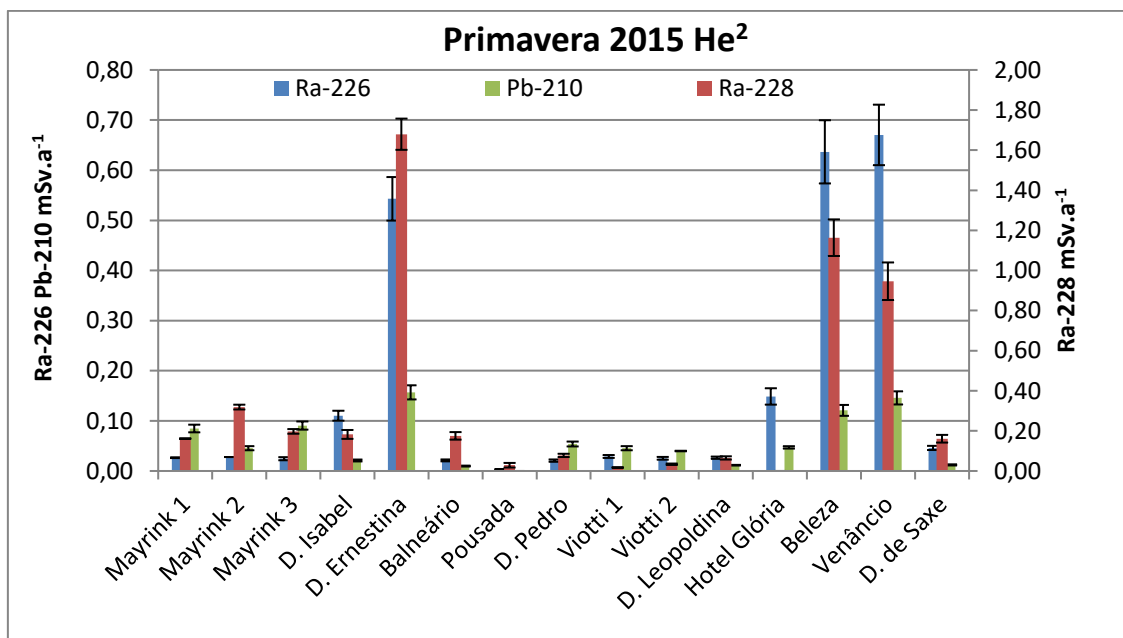


Figura 4.22 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público de até 15 anos (He1) nas amostras de verão de 2016.

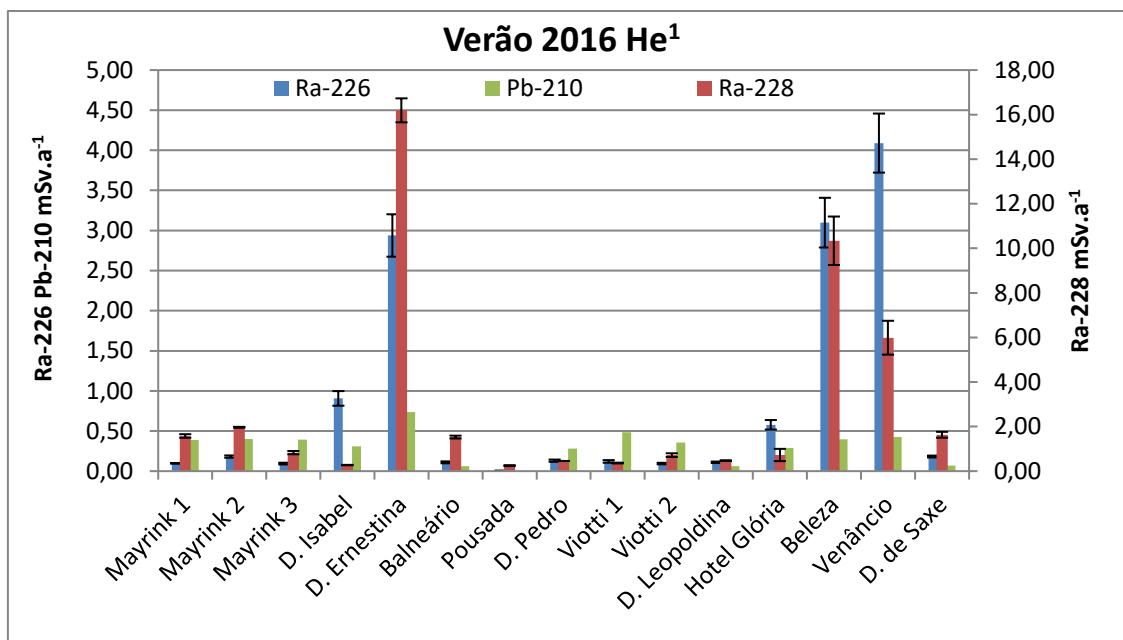


Figura 4.23 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público adulto (He2) nas amostras de verão de 2016.

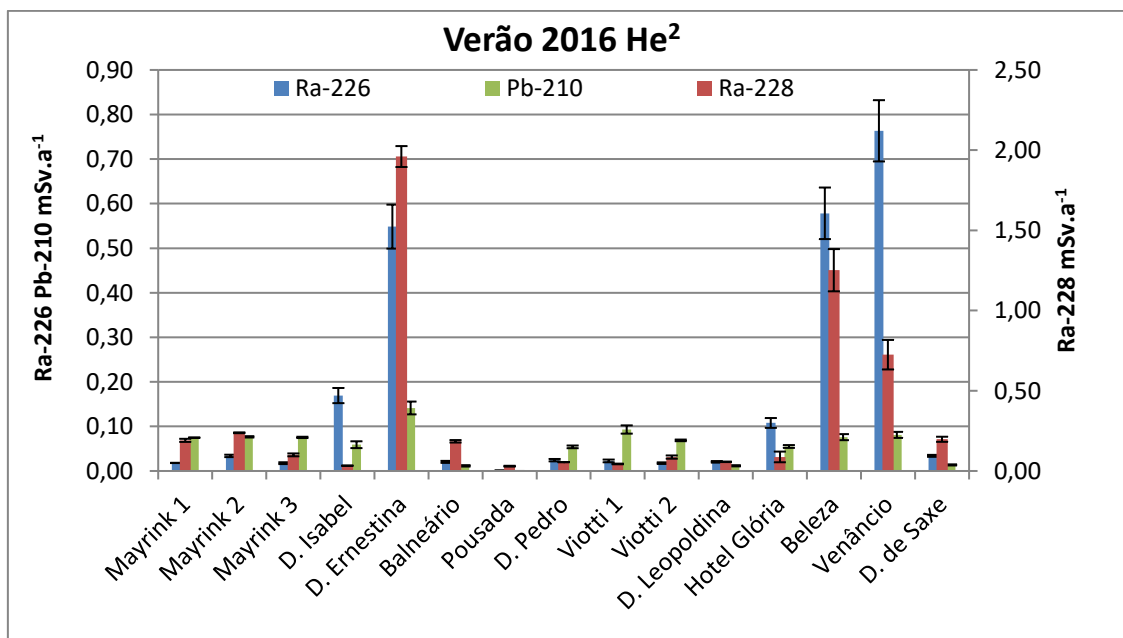


Figura 4.24 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público de até 15 anos (He1) nas amostras de outono de 2016.

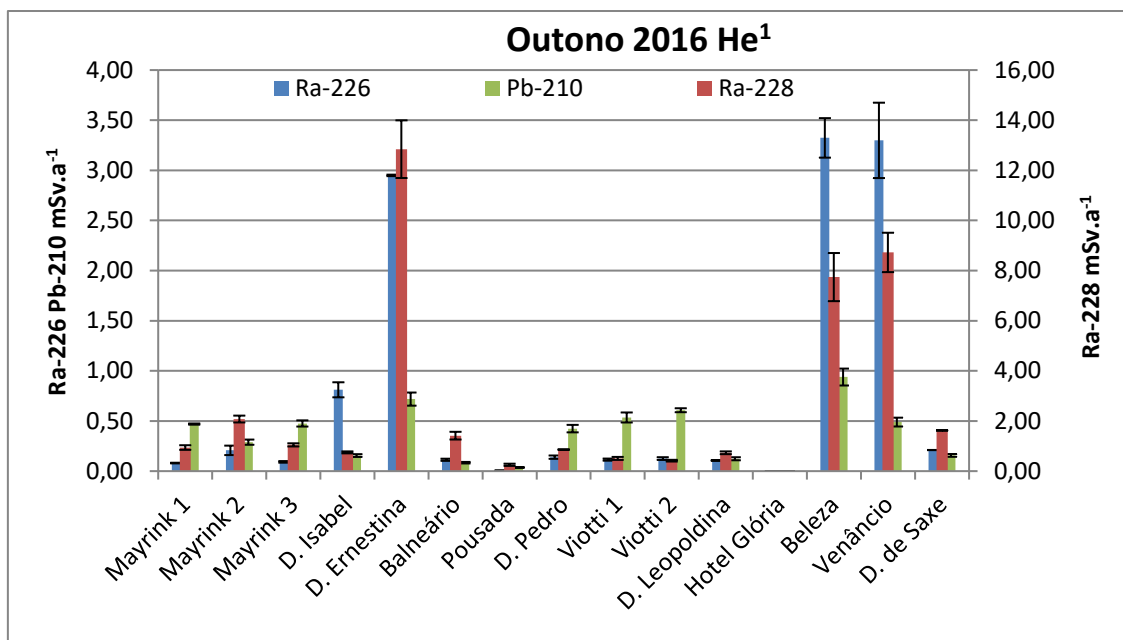


Figura 4.25 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público adulto (He2) nas amostras de outono de 2016.

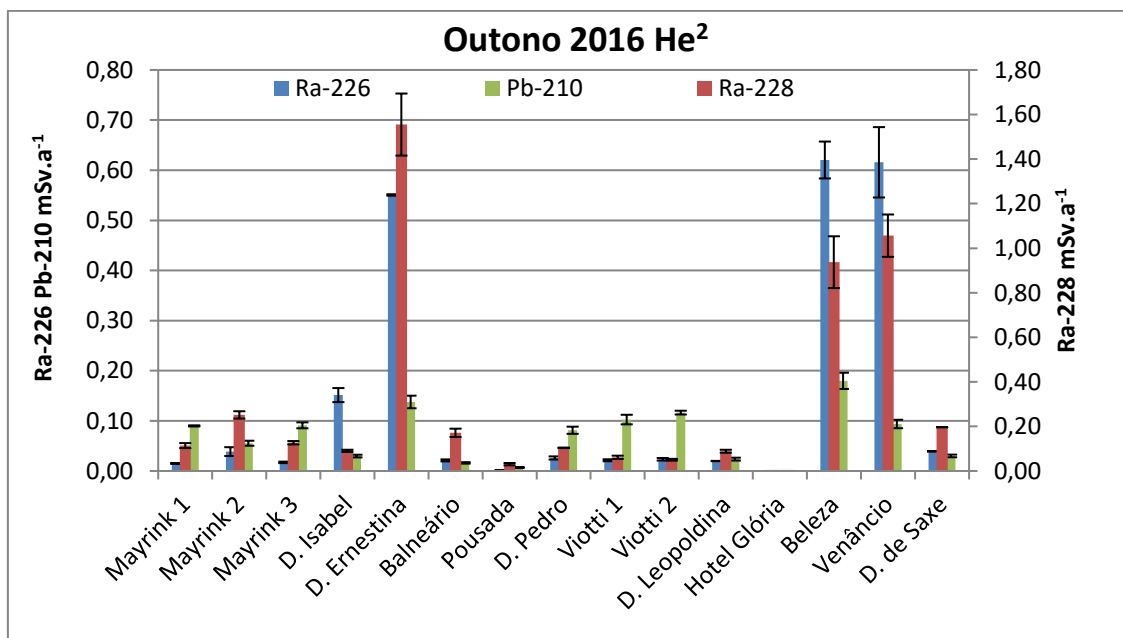


Figura 4.26 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público de até 15 anos (He1) nas amostras de inverno de 2016.

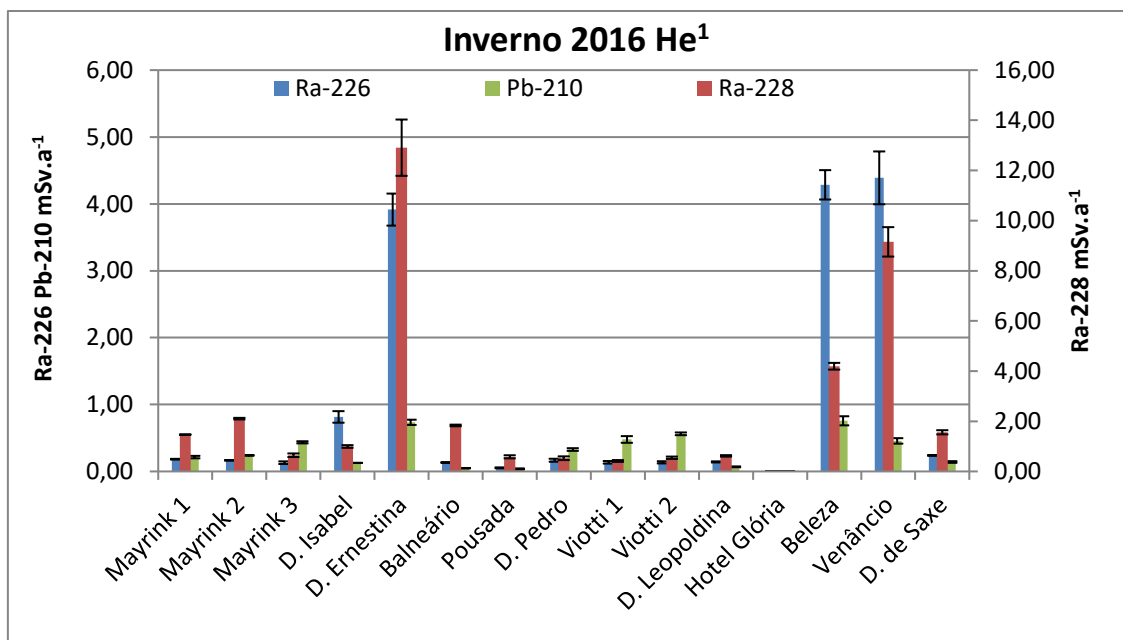


Figura 4.27 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público adulto (He2) nas amostras de inverno de 2016.

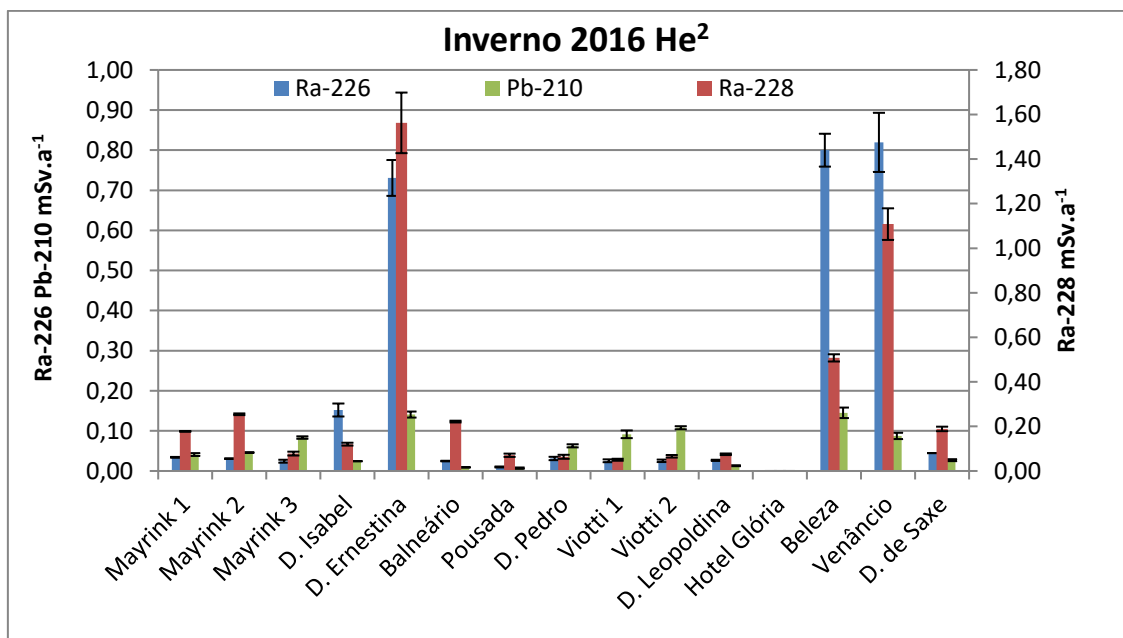


Figura 4.28 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público de até 15 anos (He1) nas amostras de primavera de 2016.

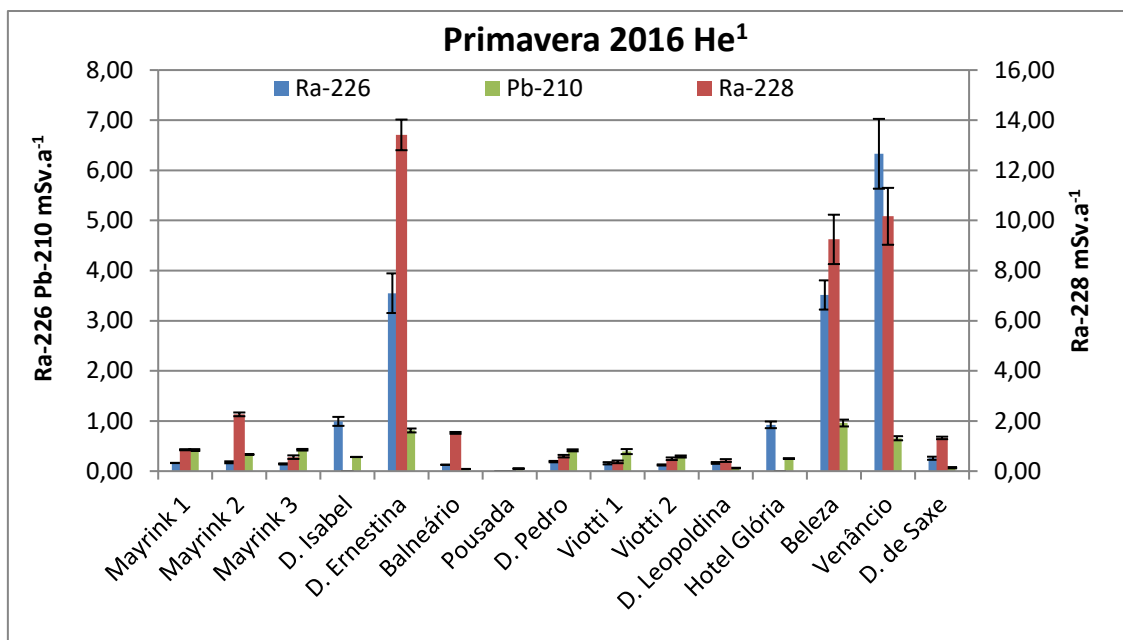
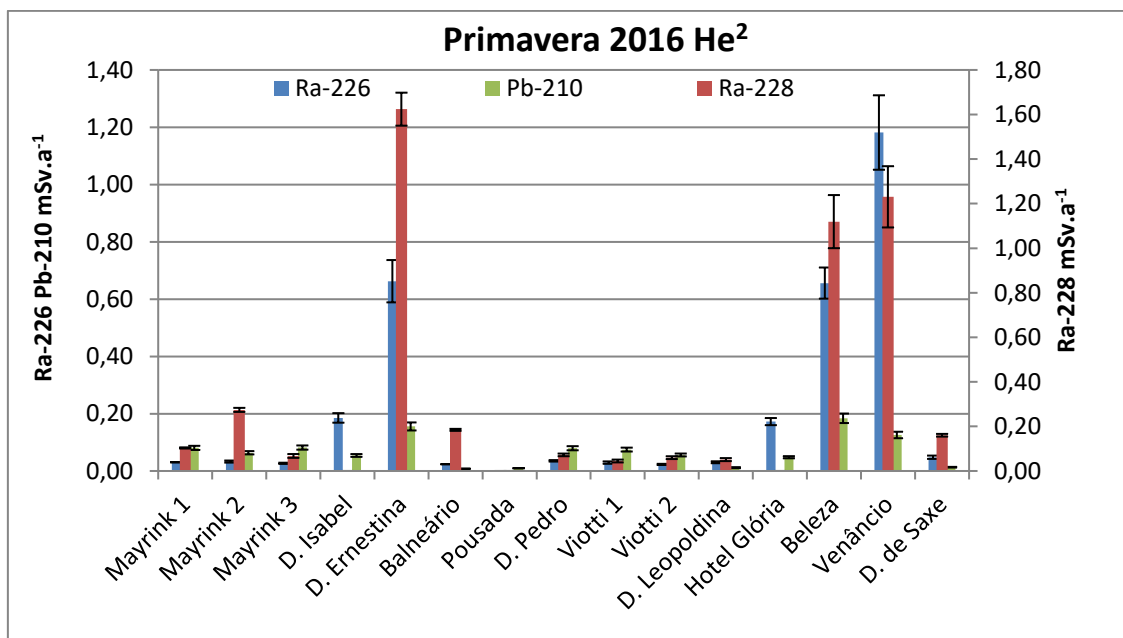


Figura 4.29 - Dose efetiva comprometida pelo consumo de 730 litro de água por ano para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb para o público adulto (He2) nas amostras de primavera de 2016.



Para o ^{210}Po , também foi calculada a dose efetiva comprometida por ingestão para o público de até 15 anos (He1) e público adulto (He2) e comparados

aos valores médio obtidos por Wakasugi (2018) e Santos (2018) conforme a TAB. 4.10 e 4.11, respectivamente.

Tabela 4.10 - Valores de dose efetiva comprometida, em $mSv.a^{-1}$, para o radionuclídeo ^{210}Po devido a ingestão das águas minerais, para o público de até 15 anos (He1) e público adulto (He2) do presente trabalho e Wakasugi (2018).

Presente trabalho	^{210}Po		Wakasugi (2018)	^{210}Po	
	He1 ($mSv.a^{-1}$)	He2 ($mSv.a^{-1}$)		He1 ($mSv.a^{-1}$)	He2 ($mSv.a^{-1}$)
Mayrink 1	0,12	0,09	Ferruginosa	0,01	0,01
Mayrink 2	0,09	0,07	Magnesiana	0,02	0,01
Mayrink 3	0,11	0,08	Gasosa I	0,01	0,01
D. Isabel	0,02	0,02	Gasosa II	0,01	0,01
Ernestina	0,12	0,09	Potável-AC	0,02	0,01
Balneário	0,01	0,01	Portável	-	-
D. Pedro	0,08	0,06	Alcalina	0,01	0,01
Viotti 1	0,09	0,07	Magnesiana	0,01	0,01
Viotti 2	0,11	0,08	Gasosa	0,01	0,01
D.					
Leopoldina	0,01	0,01	Lig. Gasosa	0,01	0,01
Beleza	0,06	0,05	Picante	0,01	0,01
Venâncio	0,09	0,07	Potável	-	-
D. de Saxe	0,02	0,01	Externa	0,01	0,01
Geiser	0,07	0,05	Ferruginosa	0,01	0,01
Hotel Glória	0,10	0,07			

Tabela 4.11 - Valores de dose efetiva comprometida, em $mSv.a^{-1}$, para o radionuclídeo ^{210}Po devido a ingestão das águas minerais, para o público de até 15 anos (He1) e público adulto (He2) do presente trabalho e Santos (2018).

Presente trabalho	^{210}Po		Santos (2018)	^{210}Po	
	He1 ($mSv.a^{-1}$)	He2 ($mSv.a^{-1}$)		He1 ($mSv.a^{-1}$)	He2 ($mSv.a^{-1}$)
Mayrink 1	0,12	0,09	Marimbeiro I	0,01	0,01
Mayrink 2	0,09	0,07	Marimbeiro II	0,01	0,01
Mayrink 3	0,11	0,08	Marimbeiro III	0,01	0,01
D. Isabel	0,02	0,02	Gasosa I	0,01	0,01
Ernestina	0,12	0,09	Gasosa II	0,01	0,00
Balneário	0,01	0,01	Gasosa III	0,01	0,01
D. Pedro	0,08	0,06	Litinida	0,01	0,01
Viotti 1	0,09	0,07	Férrea	0,04	0,03
Viotti 2	0,11	0,08	Potável	-	-
D.Leopoldina	0,01	0,01			
Beleza	0,06	0,05			
Venâncio	0,09	0,07			
D. de Saxe	0,02	0,01			
Geiser	0,07	0,05			
Hotel Glória	0,10	0,07			

Observou-se que ao comparar a dose efetiva comprometida da concentração média de ^{210}Po de Wakasugi e Santos, as amostras do Parque das Águas de Caxambu apresentam valores significativamente maiores. Verificou-se também que os valores de dose efetiva comprometida de ^{210}Po do presente trabalho, na maioria das fontes apresentaram valores próximos ou superiores ao limite estabelecido pela WHO de $0,1 \text{ mSv.a}^{-1}$. Apenas as fontes D. Isabel, D. Leopoldina, Beleza, D. de Saxe e a água do Balneário apresentaram valores inferiores de dose se comparadas às outras fontes.

Para o público de até 15 anos, o valor máximo de dose efetiva comprometida estabelecido pela WHO de $0,1 \text{ mSv.a}^{-1}$ foi ultrapassado em quase todas as amostras para os radionuclídeos ^{228}Ra , ^{226}Ra e ^{210}Pb , sendo o ^{228}Ra o que mais contribuiu com as doses, alcançando valor muito acima do que o estabelecido; para o público adulto, esse valor foi ultrapassado apenas para algumas amostras.

No geral, as fontes D. Ernestina, Beleza e Venâncio apresentaram resultados de dose muito acima do que as outras fontes, tanto para o público até 15 anos quanto para o público adulto.

4.4. Determinação elementar por Espectrometria de Fluorescência de raios X (EDXRF)

A Espectrometria de Fluorescência de raios X (EDXRF) utilizada no presente trabalho foi capaz de determinar os elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn nas fontes D. Leopoldina, Venâncio, Beleza, Ernestina, D. Pedro, Hotel Glória e no gêiser, conforme a TAB. 4.12.

Tabela 4.12 - Espectrometria de Fluorescência de raios X (EDXRF) das amostras Hotel Glória, D. Leopoldina, Venâncio, Beleza, Ernestina, D. Pedro e Geiser em mg.L⁻¹.

Elementos	Hotel Glória mg.L ⁻¹	D. Leopoldina mg.L ⁻¹	Venâncio mg.L ⁻¹	Beleza mg.L ⁻¹	Ernestina mg.L ⁻¹	D. Pedro mg.L ⁻¹	Gêiser mg.L ⁻¹
As	2,3 ± 0,4	1,6 ± 0,3	1,9 ± 0,2	2,7 ± 0,5	5,0 ± 0,2	3,7 ± 0,1	1,7 ± 0,2
Ba	45 ± 8	17,6 ± 0,7	12,8 ± 1,7	36 ± 3	33 ± 3	20,4 ± 0,7	12,2 ± 2,3
Cd	1,4 ± 0,2	-	1,0 ± 0,1	3,5 ± 0,5	0,9 ± 0,1	1,0 ± 0,1	1,7 ± 0,2
Ca	<u>427 ± 10</u>	<u>822 ± 6</u>	<u>2367 ± 65</u>	<u>3004 ± 42</u>	<u>2226 ± 569</u>	<u>3749 ± 9</u>	<u>3181 ± 51</u>
Pb	1,4 ± 0,2	1,3 ± 0,1	1,8 ± 0,1	0,6 ± 0,1	1,6 ± 0,1	2,3 ± 0,3	2,2 ± 0,5
Mn	2,3 ± 0,1	1,5 ± 0,1	5,7 ± 0,5	2,5 ± 0,1	2,6 ± 0,5	1,8 ± 0,01	6,0 ± 1,2
Ni	-	1,9 ± 0,1	2,1 ± 0,1	-	1,3 ± 0,1	288 ± 12	0,4 ± 0,1
K	<u>373 ± 10</u>	<u>583 ± 14</u>	<u>1704 ± 34</u>	<u>2217 ± 17</u>	<u>1741 ± 9</u>	<u>288 ± 12</u>	<u>2461 ± 28</u>
Se	0,2 ± 0,01	0,1 ± 0,001	0,1 ± 0,01	0,3 ± 0,01	0,2 ± 0,01	0,3 ± 0,02	0,30 ± 0,01
Ag	2,6 ± 0,2	4,1 ± 0,4	2,6 ± 0,1	4,2 ± 0,5	2,1 ± 0,4	6,9 ± 1,2	4,3 ± 0,7
Ti	5,4 ± 0,1	-	0,7 ± 0,03	7,1 ± 0,3	1,7 ± 0,1	2,7 ± 0,1	2,8 ± 0,1
V	2,7 ± 0,3	2,6 ± 0,2	3,3 ± 0,3	5,7 ± 0,8	2,8 ± 0,6	8,2 ± 0,9	1,8 ± 0,2
Cr	3,2 ± 0,6	3,5 ± 0,6	3,6 ± 0,4	1,7 ± 0,03	4,5 ± 0,5	3,6 ± 0,2	3,6 ± 0,5
Co	3,1 ± 0,6	5,0 ± 0,8	2,8 ± 0,1	1,3 ± 0,3	3,4 ± 0,4	5,9 ± 0,8	1,20 ± 0,01
Cu	1,2 ± 0,1	6,4 ± 0,8	5,9 ± 0,6	8,0 ± 0,6	7,1 ± 0,6	9,5 ± 0,8	7,5 ± 1,0
Fe	83 ± 10	3,7 ± 0,4	39 ± 6	63 ± 3	57 ± 5	5,6 ± 1,0	54 ± 4
Zn	-	-	0,7 ± 0,1	2,6 ± 0,5	19 ± 2	-	-

- não mensurado

É possível observar na análise elementar que o Ca e o K são os elementos predominantes nas sete fontes analisadas, apresentando concentrações muito mais altas se comparados aos outros elementos determinados. Ao comparar com a literatura, esses valores apresentam ainda valores até 100 vezes superiores. (Morgano, 2002; Bertolo, 2016; Santos, 2018; Wakasugi, 2018). Para o Ca, o valor máximo foi de 3003,9 ± 42,2 mg.L⁻¹, e para o K foi de 2461 ± 28,1 mg.L⁻¹.

O único elemento que apresentou um comportamento atípico em relação as outras fontes foi o Ni, que esteve abaixo do LID para o Hotel Glória e Beleza e abaixo de 2,1 mg.L⁻¹ para as outras fontes, com exceção da fonte D. Pedro que apresentou valor de 287,8 ± 12,2 mg.L⁻¹.

4.5. Resumo da média dos resultados das análises realizadas com as águas do Parque das Águas de Caxambu

Nas TAB. 4.13 e TAB. 4.14 é apresentada a síntese dos dados obtidos no presente trabalho, composta pelos valores médios de pH, temperatura e da concentração de atividade, em mBq.L⁻¹, dos radionuclídeos ²²⁸Ra, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb e ²¹⁰Po. Para as fontes em que a caracterização química inorgânica foi realizada, são apresentados também os valores de concentração em mg.L⁻¹.

Tabela 4.13: Valores médios de pH, temperatura e concentração de atividade (mBq.L⁻¹).

		Mayrink 1	Mayrink 2	Mayrink 3	D. Isabel	Potável	Balneário	Viotti 1	Viotti 2	D. de Saxe
pH		5,57	5,54	5,58	6,29	6,9	6,8	5,56	5,51	6,45
Temperatura °C		24,8	25,1	25	24,3	25	25	25	24,1	24,7
Concentração em mBq.L ⁻¹	²²⁸ Ra	317 ± 9	610 ± 26	249 ± 18	227 ± 19	79 ± 13	415 ± 19	112 ± 11	126 ± 12	422 ± 18
	²²⁶ Ra	118 ± 5	167 ± 13	107 ± 13	822 ± 70	18 ± 2	110 ± 8	124 ± 15	117 ± 12	206 ± 13
	²¹⁰ Pb	130 ± 7	122 ± 8	165 ± 11	78 ± 7	16 ± 2	30 ± 3	162 ± 15	154 ± 7	206 ± 13
	²¹⁰ Po	103 ± 3	80 ± 4	91 ± 5	18 ± 1	<LID	7,4 ± 1,2	79 ± 8	90 ± 4	16 ± 1

Tabela 4.14: Valores médios de pH, temperatura, concentração de atividade (mBq.L⁻¹) dos radionuclídeos e concentração dos elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn em mg.L⁻¹.

		Ernestina	D. Pedro	Geiser	D. Leopoldina	Hotel Glória	Beleza	Venâncio	
		pH	6,5	5,79	7,22	6,05	6,14	6,6	6,56
		Temperatura °C	24,5	24,8	26,2	24,2	26	24,9	26,2
Concentração em mBq.L ⁻¹	²²⁸ Ra	3776 ± 253	168 ± 12	5610 ± 350	146 ± 12	197 ± 44	2303 ± 167	2342 ± 227	
	²²⁶ Ra	3113 ± 231	135 ± 14	2529 ± 152	137 ± 11	730 ± 67	3421 ± 240	4317 ± 426	
	²¹⁰ Pb	293 ± 25	132 ± 11,	413 ± 34	28 ± 3,	89 ± 6	288 ± 26	224 ± 20	
	²¹⁰ Po	99 ± 4	66 ± 3	61 ± 3	12 ± 1	83 ± 3	55 ± 2	75 ± 3	
Concentração em mg.L ⁻¹	As	5,0 ± 0,2	3,7 ± 0,1	1,7 ± 0,2	1,6 ± 0,3	2,3 ± 0,4	2,7 ± 0,5	1,9 ± 0,2	
	Ba	32,9 ± 3,1	20,4 ± 0,7	12,2 ± 2,3	17,6 ± 0,7	45,0 ± 7,6	36,1 ± 3,1	12,8 ± 1,7	
	Cd	0,9 ± 0,1	1,0 ± 0,1	1,7 ± 0,2	-	1,4 ± 0,2	3,5 ± 0,5	1,0 ± 0,1	
	Ca	2226,4 ± 55,9	373,9 ± 8,6	3181,3 ± 51,4	822 ± 6,0	426,6 ± 9,6	3003,9 ± 42,2	2366,7 ± 64,9	
	Pb	1,6 ± 0,1	2,3 ± 0,3	2,2 ± 0,5	1,3 ± 0,1	1,4 ± 0,2	0,6 ± 0,1	1,8 ± 0,1	
	Mn	2,6 ± 0,5	1,8 ± 0,01	6,0 ± 1,2	1,5 ± 0,1	2,3 ± 0,1	2,5 ± 0,1	5,7 ± 0,5	
	Ni	1,3 ± 0,1	287,8 ± 12,2	0,4 ± 0,1	1,9 ± 0,1	-	-	2,1 ± 0,1	
	K	1741,2 ± 8,5	287,8 ± 12,2	2461 ± 28,1	583 ± 13,7	372,7 ± 9,6	2216,5 ± 17,2	1703,6 ± 33,6	
	Se	0,2 ± 0,01	0,3 ± 0,02	0,3 ± 0,01	0,1 ± 0,001	0,2 ± 0,01	0,3 ± 0,01	0,1 ± 0,01	
	Ag	2,1 ± 0,4	6,9 ± 1,2	4,3 ± 0,7	4,1 ± 0,4	2,6 ± 0,2	4,2 ± 0,5	2,6 ± 0,1	
	Ti	1,7 ± 0,1	2,7 ± 0,1	2,8 ± 0,1	-	5,4 ± 0,1	7,1 ± 0,3	0,7 ± 0,03	
	V	2,8 ± 0,6	8,2 ± 0,9	1,8 ± 0,2	2,6 ± 0,2	2,7 ± 0,3	5,7 ± 0,8	3,3 ± 0,3	
	Cr	4,5 ± 0,5	3,6 ± 0,2	3,6 ± 0,5	3,5 ± 0,6	3,2 ± 0,6	1,7 ± 0,03	3,6 ± 0,4	
	Co	3,4 ± 0,4	5,9 ± 0,8	1,2 ± 0,01	5,0 ± 0,8	3,1 ± 0,6	1,3 ± 0,3	2,8 ± 0,1	
	Cu	7,1 ± 0,6	9,5 ± 0,8	7,5 ± 1,0	6,4 ± 0,8	1,2 ± 0,1	8,0 ± 0,6	5,9 ± 0,6	
	Fe	57,1 ± 4,6	5,6 ± 1,0	53,5 ± 4,1	3,7 ± 0,4	82,8 ± 9,6	63,0 ± 2,6	38,7 ± 5,8	
Zn	18,8 ± 2,1	-	-	-	-	2,6 ± 0,5	0,7 ± 0,1		

5. CONCLUSÃO

O presente trabalho avaliou nas amostras de água mineral do Parque das Águas de Caxambu fatores físico-químicos, como pH e Temperatura (*in situ*) e a concentração de atividade dos radionuclídeos naturais ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po pertencentes a série de decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th , assim como suas doses efetivas, para a avaliação da radiação natural presente nas águas do parque. Foram avaliadas também as concentrações dos elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn nas fontes D. Leopoldina, Venâncio, Beleza, Ernestina, D. Pedro, Hotel Glória e no Gêiser.

A temperatura das águas variou de 22°C a 29°C, caracterizando as amostras abaixo de 25°C como fontes frias e as de 25°C a 33°C como hipotermiais, segundo o código de águas minerais (Brasil, 1945); apenas as amostras do Gêiser, Hotel Glória e Venâncio podem ser classificadas como hipotermiais em todas as coletas.

Apesar da temperatura entre as fontes não apresentar grande variação, foi possível observar um aumento significativo na temperatura das águas ao comparar com os dados publicados por Monat em 1894. Esse aumento de temperatura não pode ser observado ao comparar com os dados do DNPM de 2014, possivelmente pelo curto intervalo de tempo entre suas análises e as do presente trabalho.

Os valores de pH das águas do presente trabalho variaram de 5,35 a 7,29, resultados que coincidem com os publicados pelo DNPM (2014) e que classifica as águas do parque de ácidas a neutras.

Ao avaliar os radionuclídeos naturais ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po , observou-se que desses, o ^{228}Ra e o ^{226}Ra apresentaram os maiores valores de concentração de atividade. Nas seis amostragens realizadas entre o outono de 2015 e a primavera de 2016, os valores de ^{226}Ra variaram de $73 \pm 3 \text{ mBq.L}^{-1}$ a $6088 \pm 584 \text{ mBq.L}^{-1}$, de $34 \pm 4 \text{ mBq.L}^{-1}$ a $6019 \pm 542 \text{ mBq.L}^{-1}$ para o ^{228}Ra ($8777 \pm 834 \text{ mBq.L}^{-1}$ na amostra do Gêiser, que é avaliado separadamente), os de ^{210}Pb de $23 \pm 1 \text{ mBq.L}^{-1}$

¹ a $365 \pm 33 \text{ mBq.L}^{-1}$ (539 mBq.L^{-1} na amostra do Gêiser) e para os de ²¹⁰Po de $7,4 \pm 1 \text{ mBq.L}^{-1}$ a $103 \pm 3 \text{ mBq.L}^{-1}$.

Quanto ao valor máximo permitido do Anexo IX da portaria 2.914 do Ministério da saúde (MS-2914, 2011) de 1 Bq.L^{-1} , observa-se que as fontes D. Ernestina, Beleza e Venâncio ultrapassam esse valor em todas as coletas e a fonte D. Isabel em apenas uma coleta.

Para o ²²⁸Ra, radionuclídeo no qual o valor estabelecido no mesmo anexo é mais restritivo ($0,1 \text{ Bq.L}^{-1}$), nota-se que todas as fontes excederam esse valor, com exceção de algumas coletas das fontes Viotti 1, Viotti 2 e D. Isabel. Contudo, em quase totalidade, as fontes ultrapassam o valor máximo estipulado pela United States Environmental Protection Agency (USEPA) de 185 mBq.L^{-1} para a soma das concentrações de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra (EPA, 1991).

Para os valores de dose efetiva no indivíduo público de até 15 anos, calculados a partir das concentrações de atividade obtidas, e comparados com o valor máximo de dose efetiva comprometida estabelecido pela WHO de $0,1 \text{ mSv.a}^{-1}$, observou-se que este valor máximo foi ultrapassado em quase todas as amostras para os radionuclídeos ²²⁸Ra, ²²⁶Ra e ²¹⁰Pb; desses, o ²²⁸Ra foi o que mais contribuiu com as doses, alcançando valores muito acima do máximo. Diferentemente do público de até 15 anos, para o público adulto esse valor foi ultrapassado apenas para algumas amostras, uma vez que seus valores são menos restritivos.

Com exceção dos valores de dose do radionuclídeo ²¹⁰Po, as fontes D. Ernestina, Beleza e Venâncio apresentam resultados de dose muito acima do que as outras fontes, tanto para o público até 15 anos quanto para o público adulto.

Para os valores de dose efetiva de ²¹⁰Po, observou-se que a maioria das fontes apresentaram valores próximos ou superiores ao limite estabelecido pela WHO (1993; 2006) de $0,1 \text{ mSv.a}^{-1}$. Apenas as fontes D. Isabel, D. Leopoldina, Beleza, D. de Saxe e a água do Balneário apresentaram valores inferiores de dose se comparadas às outras fontes. Comparando os valores de dose efetiva comprometida de ²¹⁰Po com os calculados por Santos (2018) e Wakasugi (2108), que analisaram as fontes de água mineral dos parques das águas de Cambuquira e

Lambari e Águas de Contendas, respectivamente, verificou-se que os valores de dose do presente trabalho apresentaram valores significativamente maiores.

Com metodologia de Espectrometria de Fluorescência de raios X (EDXRF) foi possível determinar as concentrações dos elementos Ag, As, Ba, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mn, Ni, Pb, Se, Ti, V e Zn nas fontes D. Leopoldina, Venâncio, Beleza, Ernestina, D. Pedro, Hotel Glória e no gêiser. Dentre esses elementos, o Ca e o K se destacaram, apresentando valores de concentração muito acima dos outros elementos e da literatura.

Por fim, com base nos resultados obtidos concentração de atividade dos radionuclídeos estudados, conclui-se que há uma flutuação nos valores de acordo com cada coleta, que obedeceram a periodicidade das estações do ano. Porém, apenas com um estudo estatístico mais restritivo é possível determinar se se trata de uma variação sazonal, onde os níveis pluviométricos afetam com pouca demora a recarga das fontes, ou uma variação natural.

6. SUGESTÃO PARA TRABALHOS FUTUROS

Para trabalhos futuros é sugerido uma análise elementar que inclua mais elementos, principalmente o Na, que provavelmente seja o elemento mais abundante em termos de concentração nessas águas; a caracterização química elementar do solo, com a finalidade de explicar com mais detalhes as concentrações dos radionuclídeos naturais e dos elementos determinados nesse trabalho, assim como analisar a concentração do ^{222}Rn , uma vez que as concentrações de atividade apresentadas são consideravelmente superiores as encontradas na literatura.

Por fim, uma análise estatística de correlação dos radionuclídeos da mesma série de decaimento e também um estudo de variação entre as concentrações de cada estação auxiliaria um melhor entendimento da estabilidade geológica do local e da influencia da sazonalidade na composição química e radioquímica das águas.

7. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALENCAR, Marcos Medrado de. Determinação de isótopos de urânio e tório em amostras de líquens canoparmelia texana. 2008. Tese de Mestrado. Universidade de São Paulo.

Amaral, Hugo André Moutinho de. "Evidencias Cientificas da Medicinal Termal-Crenoterapia." (2011).

Bertolo, Reginaldo, Ricardo Hirata, and Amélia Fernandes. "Hidrogeoquímica das águas minerais envasadas do Brasil." *Revista Brasileira de Geociências* 37.3 (2016): 515-529.

Bonotto, Daniel Marcos, and T. O. Bueno. "The natural radioactivity in Guarani aquifer groundwater, Brazil." *Applied radiation and isotopes* 66.10 (2008): 1507-1522.

Brasil 1945. Decreto-lei nº 7.841, de 8 de Agosto de 1945.

Carvalho, F., D. Chambers, S. Fernandes, S. Fesenko, R. Goulet, B. Howard, C. K. Kim et al. "The environmental behaviour of radium: revised edition", 2014.

Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN. 2011. Diretrizes Básicas de Proteção Radiológica, CNEN-NN-3.01, Rio de Janeiro.

Consórcio Guarani: Tahal Consulting Engineers Ltd., Seinco S.R.L., Hidroestructuras S.A., HidrocontrolS.A., Hidroambiente S.A. Técnicas Geofísicas Terrestres Aplicáveis ao Estudo no Sistema Aquífero Guarani (SAG) e Guia Básico de Dados Regionais. 278 pp.

CPRM - Serviço Geológico do Brasil. Projeto Circuito das Águas do Estado de Minas Gerais. Estudos geoambientais das fontes hidrominerais de Cambuquira, Caxambu, Conceição do Rio Verde, Lambari e São Lourenço. Belo Horizonte, pp. 142, 1998.

Cothern CR, Rebers P. Radon, Radium and Uranium in Drinking Waters. 285 p. Lewis Publishers, INC, 1990.

Damatto, S. R.; Leonardo, Lucio; Mazzilli, B. P. Monitoring anthropogenic airborne ^{210}Pb and ^{210}Po in the vicinity of a TENORM industry using lichen as bio-indicator. In: International Topical Conference on Po and Radioactive Pb isotopes, 2009, Seville. Proceedings of the International Topical Conference on Po and Radioactive Pb isotopes, 2009.

DE MELLO, D. R. Regulamento técnico para águas envasadas e gelo. Resolução RDC nº 274, de 22 de setembro de 2005.

DNPM 2015. Sumário Nacional 2015, Departamento Nacional de Produção Mineral, 135p.

Eisenbud M. Environmental radioactivity. Academic Press, Orlando, 1987.

Erden, Pınar Esra, Abdullah Dirican, Meryem Seferinoğlu, Emin Yeltepe, and Namık Kemal Şahin. " ^{238}U , ^{234}U and ^{226}Ra concentrations in mineral waters and their contribution to the annual committed effective dose in Turkey." Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 301, no. 1 (2014): 159-166.

EPA, Final Draft for the Drinking Water Criteria Document on Radium, U.S.EPA, TR-1241-85, Washington, DC, 1991.

Ferronskiĭ, Vasiliĭ Ivanovich, and V. A. Polĭakov. Environmental isotopes in the hydrosphere. John Wiley & Sons, Chichester, United Kingdom (1982).

Frengstad, B. S., Lax, K., Tarvainen, T., Jæger, Ø., & Wigum, B. J. (2010). The chemistry of bottled mineral and spring waters from Norway, Sweden, Finland and Iceland. Journal of Geochemical Exploration, 107(3), 350-361.

Grotzinger, John, and Tom Jordan. *Para Entender a Terra-6*. Bookman Editora, United States (2013).

IBGE – Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística - Censo Demográfico 2017/2018. Disponível em: <<https://www.ibge.gov.br>>.

IDOETA, R.; HERRANZ, M.; LEGARDA, F. The disequilibrium between ^{210}Po and ^{210}Pb in raw and drinking waters. Applied Radiation and Isotopes, v. 69, n. 1, p. 196-200, 2011.

Lemos, M. L. Fonte Floriano de Lemos. V.1. O Parque das Águas de Caxambu. Rio de Janeiro, 51p. 2001.

Lemos, M. L. Fonte Floriano de Lemos. V.2. Caxambu de Água Santa a Patrimônio Estadual. Rio de Janeiro, 216p. 2007.

Macêdo, JAB de. "Águas & águas." São Paulo: Varela 505 (2001).

Marovic G, Sencar J, Franic Z, Lokobauer N. Radium-226 in thermal and mineral springs of Croatia and associated health risks. J.Environ.Radioact. 33(3): 309-317, 1996.

Mazzilli, B., et al. "Radiochemical characterization of Brazilian phosphogypsum." Journal of Environmental Radioactivity 49.1 (2000): 113-122.

Monat, Henrique. Caxambu. Luiz Macedo, 262p. 1894.

MOREIRA, S. R. D. Determinação de ^{210}Pb em águas minerais da cidade de Águas da Prata. 1993. 62p. Dissertação (Mestrado em tecnologia Nuclear). Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

Morgano, Marcelo A., et al. "Avaliação físico-química de águas minerais comercializadas na região de Campinas, SP." Ciência e Tecnologia de Alimentos 22.3 (2002): 329-343.

MS-2914, ANEXO IX, Ministério de Estado da Saúde–MS. Procedimentos de controle e de vigilância da qualidade da água para consumo humano e seu padrão de potabilidade, Portaria nº 2914, República Federativa do Brasil, 2011.

Negrão, S. G. Determinação dos isótopos naturais de rádio de meias-vidas longas, ^{226}Ra e ^{228}Ra , em águas minerais utilizadas nos Balneários de Caxambu (MG) e águas de Lindóia (SP). São Paulo, 74p. 2012. (Dissertação de mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas - IPEN).

NIERI NETO, A. Determinação de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas minerais radioativas. 1996. 94p. Dissertação (mestrado em tecnologia Nuclear). Instituto de Pesquisas Energéticas –IPEN, São Paulo.

OLIVEIRA, J. Determinação de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas minerais da região de Águas da Prata. 1993. 82p. Dissertação (Mestrado em tecnologia Nuclear). Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo.

PREFEITURA MUNICIPAL DE CAXAMBU; Resgate Histórico Municipal. Relatório Interno. 1998, 53p.

Rigozo, N. R., and D. J. R. Nordemann. "Iterative regression analysis of periodicities in geophysical record time series." *Revista Brasileira de Geofísica* 16.2-3 (1998): 149-158.

Santos, L. A. Avaliação das concentrações dos radionuclídeos ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb , ^{210}Po e caracterização química inorgânica das águas minerais do Parque das Águas de Cambuquira e Marimbeiro, MG. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear) Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN-CNEN/SP. São Paulo.

UNSCEAR, Sources. effects of Ionizing Radiation. United Nations, New York, p. 453-487, 2000.

WALLNER, Gabriele; JABBAR, Tania. Natural radionuclides in Austrian bottled mineral waters. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, v. 286, n. 2, p. 329-334, 2010.

WAKASUGI, D. S. M. Avaliação da concentração de ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{210}Pb e ^{210}Po e caracterização química inorgânica das águas minerais dos Parques das Águas de Águas de Contendas e Lambari – MG. 2018. 250 p. Dissertação (Mestrado em Tecnologia Nuclear) Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares – IPEN-CNEN/SP. São Paulo.

WHO - World Health Organization. *Guidelines for Drinking Water Quality, Recommendations*, 2nd edition, Vol. 1, Geneva, 1993.

WHO - World Health Organization. *Guidelines for Drinking Water Quality*, third ed. Geneva, 2004.

WHO - World Health Organization. *Guidelines for Drinking Water Quality, Recommendation*, 3rd edition, including the first addendum Vol. 1, Geneva, 2006.