

**UNIVERSIDADE TECNOLÓGICA FEDERAL DO PARANÁ
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM ENGENHARIA ELÉTRICA E
INFORMÁTICA INDUSTRIAL**

JAQUELINE KAPPKE

**MEDIDAS DAS CONCENTRAÇÕES DE RÁDIO EM ÁGUAS
MINERAIS DISPONÍVEIS À VENDA NO BRASIL**

TESE

**CURITIBA
2013**

JAQUELINE KAPPKE

**MEDIDAS DAS CONCENTRAÇÕES DE RÁDIO EM ÁGUAS
MINERAIS DISPONÍVEIS À VENDA NO BRASIL**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica e Informática Industrial da Universidade Tecnológica Federal do Paraná, como requisito parcial para a obtenção do título de “Doutor em Ciências” - Área de Concentração: Engenharia Biomédica.

Orientador: Prof. Dr. Sergei Anatolyevich Paschuk.

CURITIBA
2013

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação

K17 Kappke, Jaqueline
Medidas das concentrações de rádio em águas minerais disponíveis à venda no Brasil / Jaqueline Kappke. — 2013.
98 f. : il. ; 30 cm

Orientador: Sergei Anatolyevich Paschuk.
Tese (Doutorado) – Universidade Tecnológica Federal do Paraná. Programa de Pós-graduação em Engenharia Elétrica e Informática Industrial. Curitiba, 2013.
Bibliografia: f. 79-82.

1. Radon. 2. Águas minerais – Análise. 3. Detectores. 4. Medição. 5. Água potável – Brasil. 6. Engenharia biomédica. 7. Engenharia elétrica – Teses. I. Paschuk, Sergei Anatolyevich, orient. II. Universidade Tecnológica Federal do Paraná. Programa de Pós-graduação em Engenharia Elétrica e Informática Industrial. III. Título.

CDD (22. ed.) 621.3

Tese de Doutorado Nº. 85

“Medidas das concentrações de rádio em águas minerais disponíveis à venda no Brasil.”

por

Jaqueline Kappke

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica e Informática Industrial – CPGEI, da Universidade Tecnológica Federal do Paraná – UTFPR, às 14h do dia 13 de março de 2013, como requisito parcial à obtenção do título de Doutora em CIÊNCIAS - Área de Concentração: Engenharia Biomédica. O trabalho foi aprovado pela Banca Examinadora, composta pelos doutores:



Prof. Sergei Anatolyevich Paschuk, Dr.
(Presidente - UTFPR)



Prof. Joaquim Teixeira de Assis, Dr.
(UERJ)



Prof. Valeriy Victorovich Denyak, Dr.
(IPPPP)



Prof. Hugo Reuters Schelin, Dr.
(UTFPR)



Profª. Janine Nicolosi Correa, Dr.
(UTFPR)

Visto da Coordenação:



Prof. Ricardo Lüders, Dr.
(Coordenador do CPGEI)

AGRADECIMENTOS

Ao CPGEI, pelo suporte a este trabalho;

À CAPES, pela bolsa de pesquisa;

À Fundação Araucária, pelo apoio financeiro;

À equipe do CDTN, pelo trabalho em conjunto e disponibilidade de trocar informações;

Ao professor Sergei, pela orientação, apoio e confiança depositada no trabalho;

Ao professor Valeriy, pelo apoio, suporte e auxílio no desenvolvimento do trabalho;

Ao professor Zildete, por todas as informações fornecidas;

À professora Janine, pela colaboração preciosa na forma de correções e discussões, além das inúmeras conversas de suporte e apoio;

Ao Marilson, pela ajuda no desenvolvimento dos experimentos;

Aos colegas do Laboratório de Radiações Ionizantes, pelos conselhos e ajuda;

Aos colegas do DAFIS, pela compreensão e apoio;

À minha família, pelo incentivo aos estudos;

Ao meu esposo, pelo amor dedicado e pela paciência durante o projeto.

RESUMO

KAPPKE, Jaqueline. Medidas das concentrações de rádio em águas minerais disponíveis à venda no Brasil. 2013. 98 f. Tese – Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica e Informática Industrial. Universidade Tecnológica Federal do Paraná. Curitiba, 2013.

Este trabalho apresenta os resultados da pesquisa sobre medidas da atividade de ^{226}Ra em águas minerais engarrafadas compradas em estabelecimentos comerciais do Brasil. As medidas foram realizadas no Laboratório de Física Nuclear Aplicada da Universidade Tecnológica Federal do Paraná em cooperação com o Centro de Desenvolvimento e Tecnologia Nuclear (CDTN) da Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN). O trabalho avalia a possibilidade do uso do equipamento RAD7 (DurrIDGE Company) para medir a atividade de ^{226}Ra em equilíbrio com ^{222}Rn presente nas amostras de águas em nível compatível com 0,1Bq/L, o que significa uma precisão superior à prática usual do equipamento. Além disso, a pesquisa fornece o erro mínimo de medida da concentração de atividade do rádio possível de ser atingida com o uso do equipamento RAD7. A principal dificuldade encontrada na técnica desenvolvida foi diminuir os erros associados às medidas. Para desenvolver a metodologia otimizada foram realizados diversos testes que propiciaram a diminuição dos erros e asseguraram uma técnica inovadora para medidas de baixas concentrações de ^{226}Ra em água, com o uso do detector eletrônico de radônio RAD7. O arranjo experimental foi baseado no detector eletrônico de radônio RAD7 e as medidas foram realizadas utilizando o *kit* RAD H₂O que permite identificar a atividade de concentração do ^{222}Rn em pequenas amostras de 40mL e 250mL. Os resultados mostraram que o erro mínimo ficou entre 0,02 a 0,07 Bq/L o que configura uma diminuição considerável e importante nos erros associados às amostras de baixas concentrações. Quando aplicada a metodologia otimizada e proposta, foi possível concluir que todas as amostras analisadas apresentaram valores abaixo que os estabelecidos pelas normas e recomendações e que os valores encontrados para as amostras possuem ordem de grandeza semelhante às encontradas na literatura. Desta forma, foi possível concluir que o detector eletrônico de radônio RAD7 pode ser utilizado nas medidas de ^{226}Ra em águas para concentrações menores que 0,1 Bq/L, mas que para isto deve ser utilizada uma técnica como esta desenvolvida para otimizar o procedimento.

Palavras-chave: Rádio. Radônio. Água. Atividade. RAD7.

ABSTRACT

KAPPKE, Jaqueline. Measurements of radium concentration in bottled mineral water ordered at Brazilian market. 2013. 98 p. Tese – Programa de Pós-Graduação em Engenharia Elétrica e Informática Industrial. Universidade Tecnológica Federal do Paraná. Curitiba, 2013.

This thesis presents the survey results of measuring the activity of ^{226}Ra in bottled mineral waters purchased in Brazilian market. The measurements were performed at the Laboratory of Applied Nuclear Physics at Federal Technological University of Paraná in cooperation with the Centre for Development and Nuclear Technology (CDTN) of the National Nuclear Energy Commission (CNEN). The study evaluates the possibility of using RAD7 equipment (DurrIDGE Company) in order to measure ^{226}Ra activity in equilibrium with ^{222}Rn present in water samples at a level compatible with 0.1 Bq/L, which means greater accuracy than the usual practice of the equipment. Furthermore, the search provides the minimum error of radio activity concentration that can be achieved using the RAD7 equipment. The main difficulty of this work was to reduce the associated errors to the measure. To develop the optimized methodology were performed several tests that enabled the reduction of errors and ensure an innovative technique for measuring low concentrations of ^{226}Ra in water, using the RAD7 radon electronic detector. The experimental setup was based on the RAD7 and measurements were performed using the RAD H2O kit that identifies the activity concentration of ^{222}Rn in small samples of 250mL. The results showed that the minimum error ranged from 0.02 to 0.07 Bq/L which constitutes a considerable and significant reduction in errors associated with low concentrations samples. When applied the optimized methodology proposed, it was concluded that all the samples had values below the established standards and recommendations and that the values found for the samples have similar order of magnitude to those found in the literature. Thus, the RAD7 radon detector electronics can be used in measurements of ^{226}Ra in water at concentrations below 0,1 Bq/L, but for that, the technique developed in order optimize the procedure should be used.

Key-words: Radium. Radon. Water. Activity. RAD7.

LISTA DE FIGURAS

FIGURA 1 - DISTRIBUIÇÃO DAS CONTRIBUIÇÕES DAS FONTES DE RADIAÇÕES	11
FIGURA 2 - ESQUEMA DE ILUSTRATIVO DO EQUIAMENTO RAD7 / H ₂ O KIT	42
FIGURA 3 - ESPECTRO DE ENERGIAS MOSTRADO PELO EQUIPAMENTO	43
FIGURA 4 - JANELA PADRÃO PARA A VISUALIZAÇÃO DE RESULTADOS NO CAPTURE V4.7	45
FIGURA 5 - EQUIPAMENTO RAD7 / H ₂ O KIT MONTADO PARA MEDIDAS DE RADÔNIO EM AMOSTRAS DE ÁGUA	47
FIGURA 6 - AERAÇÃO DE UMA AMOSTRA DE 40ML	48
FIGURA 7 - FOTOGRAFIA DO SISTEMA MONTADO APÓS ADAPTAÇÃO	51
FIGURA 8 - ESQUEMA DO SISTEMA DESENVOLVIDO NO PRESENTE TRABALHO PARA DIMINUIR E VERIFICAR O <i>BACKGROUND</i> E DIMINUIR OS ERROS ASSOCIADOS AS MEDIDAS	52
FIGURA 9 - FLUXOGRAMA DA METODOLOGIA EMPREGADA NA REALIZAÇÃO DAS MEDIDAS DE RÁDIO EM EQUILÍBRIO COM RADÔNIO EM ÁGUAS MINERAIS	54
FIGURA 10 - ESQUEMA DO EXPERIMENTO PARA VERIFICAÇÃO DA SÍLICA	57
FIGURA 11 - CONEXÃO DIRETA ENTRE O <i>IN</i> E O <i>OUT</i> DO EQUIPAMENTO COM O FILTRO PARA MEDIDA DE <i>BACKGROUND</i> EM FUNÇÃO DO TEMPO	58
FIGURA 12 - CONEXÃO DIRETA ENTRE O <i>IN</i> E O <i>OUT</i> DO EQUIPAMENTO PARA MEDIDA DE <i>BACKGROUND</i> EM FUNÇÃO DO TEMPO	58
FIGURA 13 - CONEXÃO DIRETA ENTRE O <i>IN</i> E O <i>OUT</i> DO EQUIPAMENTO COM O FILTRO ACOPLADO POR MEIO DE COLA SINTÉTICA PARA MEDIDA DE <i>BACKGROUND</i> EM FUNÇÃO DO TEMPO	58
FIGURA 14 - GRÁFICO DA VARIAÇÃO DO <i>BACKGROUND</i> EM FUNÇÃO DO TEMPO DE MEDIDA	70
FIGURA 15 - RESULTADO DO TESTE DE VARIAÇÃO DO BG EM FUNÇÃO DO TEMPO COM EXCLUSÃO DA SÍLICA DO SISTEMA	71
FIGURA 16 - RESULTADO DO TESTE DE VARIAÇÃO DO BG EM FUNÇÃO DO TEMPO COM CONEXÃO DIRETA	72
FIGURA 17 - RESULTADOS DA MEDIDA DE <i>BACKGROUND</i> COM A MENOR CONEXÃO ENTRE O <i>IN</i> E O <i>OUT</i> UTILIZANDO UM FILTRO COMPLETAMENTE COLADO	73
FIGURA 18 - RESULTADOS DA MEDIDA DE <i>BACKGROUND</i> COM A MENOR CONEXÃO ENTRE O <i>IN</i> E O <i>OUT</i> SEM O USO DO FILTRO	73
FIGURA 19 - RESULTADOS DAS CONCENTRAÇÕES DE ATIVIDADE DE ²²⁶ Ra EM AMOSTRAS DE ÁGUA DESTILADA EVAPORADAS	75

LISTA DE TABELAS

TABELA 1 - SÉRIE DO ^{238}U - DADOS DO NATIONAL NUCLEAR DATA CENTER ...	22
TABELA 2 - SÉRIE DO ^{232}Th - DADOS DO NATIONAL NUCLEAR DATA CENTER.....	22
TABELA 3 - SÉRIE DO ACTÍNIO - DADOS DO NATIONAL NUCLEAR DATA CENTER.....	22
TABELA 4 - CONCENTRAÇÕES TOTAIS ALFA PARA ÁGUAS MINERAIS ENGARRAFADAS DA ESPANHA, PORTUGAL E FRANÇA	30
TABELA 5 - VALORES MÉDIOS DA CONCENTRAÇÃO DE ATIVIDADE DE ^{226}Ra , ^{228}Ra E ^{210}Pb EM ÁGUAS MINERAIS BRASILEIRAS	31
TABELA 6 - FATOR DE PESO PARA OS DIFERENTES TIPOS DE RADIAÇÃO	34
TABELA 7 - LIMITES DE ATIVIDADE DE RADÔNIO PRESENTE NA FONTE	36
TABELA 8 - CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra OBTIDA UTILIZANDO OS PROTOCOLOS SUGERIDOS PELO MANUAL DO EQUIPAMENTO.	60
TABELA 9 - ANÁLISE DETALHADA DOS DADOS DE CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (PROTOCOLOS SUGERIDOS PELO MANUAL) COM OS LIMITES ESTABELECIDOS PELA ORGANIZAÇÃO MUNDIAL DE SAÚDE.	61
TABELA 10 - MEDIDAS DO <i>BACKGROUND</i> DOS TESTES DE PROTOCOLO DO SISTEMA ABERTO.....	63
TABELA 11 - MEDIDAS DE <i>BACKGROUND</i> DOS TESTES DE PROTOCOLO DO SISTEMA ABERTO UTILIZANDO O SISTEMA COM CARVÃO ATIVADO	63
TABELA 12 - MEDIDAS DE <i>BACKGROUND</i> EM ÁGUA DESTILADA DO SISTEMA FECHADO UTILIZANDO O CARVÃO ATIVADO ANTES DAS MEDIDAS	64
TABELA 13 - RESULTADOS DAS MEDIDAS DE ÁGUA DESTILADA PARA TESTAR O NOVO SISTEMA	65
TABELA 14 - RESULTADOS DETALHADOS USADOS PARA OS CÁLCULOS DAS MEDIDAS DAS CONCENTRAÇÕES DE ^{226}Ra EM ÁGUAS MINERAIS	66
TABELA 15 - CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra UTILIZANDO A TÉCNICA DESENVOLVIDA	67
TABELA 16 - ANÁLISE DETALHADA DOS DADOS DE CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (PROTOCOLO OTIMIZADO) COM OS LIMITES ESTABELECIDOS PELA ORGANIZAÇÃO MUNDIAL DE SAÚDE	69
TABELA 17 - CONCENTRAÇÃO DE ATIVIDADE DE ^{226}Ra EM AMOSTRAS DE ÁGUA DESTILADA EVAPORADAS	74

LISTA DE SIGLAS

ADC	Allyldiglycolcarbonate
AM	Amostra
ANN	Artificial Neural Network
ANVISA	Agência Nacional de Vigilância Sanitária
ANVISA	Agência Nacional de Vigilância Sanitária
ATSDR	Agency for Toxic Substances and Disease Registry
BG	Background
CAPES	Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior
CDTN	Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear
CL	Célula de Lucas
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
CPGEI	Programa de Pós-graduação em Engenharia Elétrica e Informática
DAFIS	Departamento Acadêmico de Física
DNA	Ácido Desoxiribonucléico
EPA	Environmental Protection Agency
GS	Espectroscopia Gama
ICRP	International Commission on Radiological Protection
IDC	Critério de Dose Individual
IRD	Instituto de Radioproteção e Dosimetria
LANL	Los Alamos National Laboratory
LS	Cintilação Líquida
NCRP	National Council on Radiation Protection
NNDC	National Nuclear Data Center
PLS	Partial Least Squares
RDC	Resolução da Diretoria Colegiada
UNSCEAR	United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation
USEPA	United States Environmental Protection Agency
USPHS	United States Public Health Service
UTFPR	Universidade Tecnológica Federal do Paraná
WHO	World Health Organization

SUMÁRIO

1 INTRODUÇÃO	11
1.1 MOTIVAÇÕES	14
1.2 OBJETIVOS	16
1.2.1 Objetivos gerais.....	16
1.2.2 Objetivos específicos	16
1.3 ESTRUTURA DA TESE.....	17
2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA	18
2.1 DECAIMENTO RADIOATIVO, MEIA-VIDA E ATIVIDADE	18
2.1.1 Cadeias de decaimento e equilíbrio secular	19
2.2 SUBSTÂNCIAS RADIOATIVAS NATURAIS.....	21
2.2.1 Urânio.....	25
2.2.2 Rádio	25
2.2.3 Radônio	31
2.3 DOSE	34
2.3.1 Aspectos radiológicos das águas.....	35
2.4 EFEITOS BIOLÓGICOS DA RADIAÇÃO.....	37
3 METODOLOGIA	40
3.1 CLASSIFICAÇÃO E DELIMITAÇÃO DA PESQUISA	40
3.2 EQUIPAMENTO: DURRIDGE RAD7.....	40
3.3 CARACTERIZAÇÃO E PREPARO DAS AMOSTRAS	45
3.4 METODOLOGIA PARA MEDIDAS DE RADÔNIO SUGERIDA PELO MANUAL DO EQUIPAMENTO RAD7 (DURRIDGE COMPANY) H ₂ O KIT	46
3.5 TESTES PARA O DESENVOLVIMENTO DA NOVA METODOLOGIA	48
3.5.1 Redução e verificação do background	49
3.5.2 Testes para o aumento do tempo de medida	49
3.6 METODOLOGIA OTIMIZADA PARA AS MEDIDAS DE ²²⁶ Ra EM ÁGUAS MINERAIS	50
3.7 ANÁLISE DOS DADOS PARA A TÉCNICA PROPOSTA	55
3.8 TESTES DE VARIAÇÃO DO BACKGROUND EM FUNÇÃO DO TEMPO DE MEDIDA.....	56
3.9 TESTE DE EVAPORAÇÃO PARA AMOSTRAS DE BAIXA CONCENTRAÇÃO DE ²²⁶ Ra.....	59
4 RESULTADOS E DISCUSSÕES	60
4.1 RESULTADOS INICIAIS - PROTOCOLO SUGERIDO PELO MANUAL.....	60
4.2 RESULTADOS DOS TESTES PARA A ALTERAÇÃO DA METODOLOGIA	62
4.2.1 Background	62
4.2.2 Tempo de medida.....	64
4.3 RESULTADOS DA METODOLOGIA OTIMIZADA PARA AS MEDIDAS DE ²²⁶ Ra EM ÁGUAS MINERAIS.....	65
4.4 RESULTADOS DOS TESTES DE VARIAÇÃO DO BACKGROUND EM FUNÇÃO DO TEMPO DE MEDIDA	69
4.5 RESULTADOS PARA OS TESTES DA METODOLOGIA DE EVAPORAÇÃO.....	74
5 CONCLUSÕES	76
6 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS	78
REFERÊNCIAS	79

APÊNDICE A – PUBLICAÇÕES SOBRE RADÔNIO DO GRUPO VINCULADO AO LABORATÓRIO DE RADIAÇÕES DA UTFPR.....	83
APÊNDICE B – RESUMO DA METODOLOGIA SUGERIDA PELO MANUAL PARA MEDIDAS DE RADONIO COM O USO DO RAD7	85
APÊNDICE C – TABELAS UTILIZADAS NOS CÁLCULOS DAS CONCENTRAÇÕES DE ²²⁶ Ra EM ÁGUAS MINERAIS COM O USO DA METODOLOGIA OTIMIZADA	86
APÊNDICE D – RESUMO DA METODOLOGIA SUGERIDA PARA MEDIDAS DE RÁDIO-226 EM ÁGUAS MINERAIS UTILIZANDO O RAD7	98

1 INTRODUÇÃO

O ser humano está constantemente exposto a radiações provenientes de diversas fontes, algumas naturais e outras resultado de atividades do ser humano. As radiações naturais incluem os raios cósmicos, a radiação externa proveniente de radionuclídeos na crosta terrestre e a radiação interna, resultado da inalação ou ingestão de radionuclídeos que são retidos pelo corpo humano. Para a maior parte dos indivíduos, a exposição ao *background* natural é a maior contribuinte para sua exposição total a radiação (UNSCEAR, 2000; UNSCEAR, 2008; UNSCEAR, 1993).

Sendo a exposição humana às fontes naturais inevitável, seu controle é fundamental e a estimativa de dose anual como média mundial devido a estas fontes naturais é estimada em 2,4 mSv. A Figura 1 mostra a contribuição de cada tipo de fonte de radiação, natural ou artificial, em porcentagem, na dose tipicamente recebida por um indivíduo, de acordo com a UNSCEAR (2008).

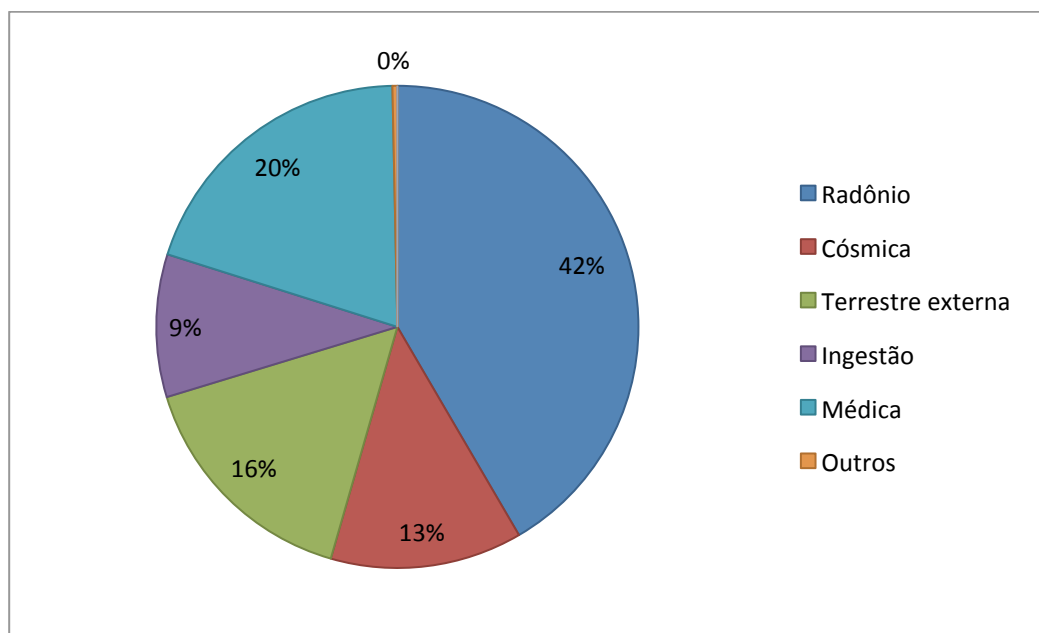


Figura 1- Distribuição das contribuições das fontes de radiações
Fonte: Adaptado de UNSCEAR (2008)

A magnitude da exposição humana às fontes naturais de radiação depende das atividades desenvolvidas e também de fatores geográficos. Muitas pessoas são expostas a elevados níveis de radiação natural em seus locais de trabalho, como por exemplo,

trabalhadores de minas subterrâneas, alguns trabalhadores envolvidos no processo de mineração e tripulações de aviões (UNSCEAR, 2008).

Os radionuclídeos naturais fazem parte da composição terrestre, estando presentes em diferentes concentrações. Os seres humanos estão expostos a fontes naturais externas, principalmente à radiação gama, resultante do decaimento dos radionuclídeos presentes nas séries radioativas como as do ^{238}U , ^{235}U , ^{232}Th . Os radionuclídeos destas séries estão presentes internamente no corpo humano e também contribuem para a irradiação interna do mesmo, por meio da interação de partículas alfa e beta. O rádio e o radônio são exemplos de radionuclídeos que contribuem, desta forma, para a dose interna (UNSCEAR, 2000).

Radionuclídeos primordiais estão presentes quantidades variadas, especialmente em águas de poço ou minerais. A presença de ^{226}Ra na água depende da origem da mesma. Para as águas minerais ou de poços, isso depende do teor de ^{238}U nas rochas presentes nos aquíferos onde a água foi armazenada. As características geoquímicas dos aquíferos determinam a dissolução de rádio dos sólidos para a água (POSCHLL e NOLLET, 2006). Portanto estas características influenciam diretamente nas concentrações de radionuclídeos nas águas. Diferentes quantidades de ^{226}Ra são encontradas nos solos e rochas. Rochas ígneas tendem a conter maiores concentrações de ^{226}Ra que pedras arenosas (*sandstones*) e calcárias (EISENBUD e GESSELL, 1997).

A água, como constituinte da crosta terrestre, contém radionuclídeos. Diferentes tipos de água cobrem mais de um terço da superfície terrestre sendo um recurso extremamente importante para a vida humana. A água pode ser utilizada para o consumo direto, para a produção de alimentos, na indústria, entre outras aplicações existentes para a mesma. Sendo assim, a radioatividade presente na água pode atingir o ser humano e o meio-ambiente por diferentes mecanismos (POSCHL e NOLET, 2006).

Devido à importância para a vida humana, a qualidade da água deve ser controlada. Desta forma, procedimentos que permitam garantir que as águas a serem consumidas estejam dentro dos limites de radioatividade natural que assegurem a segurança para a saúde humana precisam ser desenvolvidos. Como a água potável é uma forma importante de ingestão de rádio e urânio, deve-se considerar esta fonte na estimativa de dose devido à ingestão. Desta forma, é importante conhecer as concentrações destes radionuclídeos nas águas utilizadas para ingestão. Quando a concentração de atividade, devido ao decaimento alfa, excede o limite recomendado, deve ser realizado um estudo para identificar os emissores alfa e suas

concentrações de atividade (UNSCEAR, 2008, UNSCEAR, 1982 e MARTIN SANCHEZ *et al.*, 1999).

O rádio é formado pelo decaimento do urânio e do tório e pode ser encontrado em pequenas quantidades no solo, água, rochas, carvão, plantas e alimentos. Os emissores alfa, devido ao baixo poder de penetração da partícula alfa, são mais perigosos ao serem consumidos que no caso de exposição externa. Desta forma, é comum as pessoas estarem expostas a pequenas quantidades de rádio. Em alguns casos pode haver exposição a quantidades maiores. Isto ocorre quando o indivíduo vive em regiões nas quais o rádio é liberado no ar devido à queima de carvão ou outros combustíveis. Ou também, se a água ingerida é obtida de uma fonte naturalmente rica em rádio, como de um poço profundo ou de uma fonte próxima a um local de eliminação de resíduos (USPHS e USEPA, 1990).

O rádio, que em sua cadeia de decaimento emite partículas alfa, devido a seu comportamento similar ao cálcio, comumente se fixa nos ossos. Estudos do efeitos do rádio em pintores de ponteiros de relógio mostram a correlação da ingestão de rádio com o desenvolvimento de osteosarcomas e carcinomas ósseos na mandíbula (UNSCEAR, 1982; MARTIN SANCHEZ *et al.*, 1999 e USPHS e USEPA, 1990).

A exposição interna resulta dos radionuclídeos consumidos por inalação ou ingestão. Doses por inalação podem resultar da presença de partículas de poeira no ar contendo radionuclídeos da cadeia de decaimento do ^{238}U e ^{232}Th , também proveniente destas séries de decaimento. Os principais componentes da exposição por inalação são os produtos de decaimento do radônio. As doses relacionadas com a ingestão se devem principalmente ao ^{40}K e aos radionuclídeos das cadeias do ^{238}U e ^{232}Th presentes nos alimentos e na água (UNSCEAR, 2000).

As concentrações dos radionuclídeos naturalmente existentes nos alimentos variam muito de acordo com os *backgrounds* dos solos, o clima e as condições de agricultura. Também existem diferenças nos alimentos típicos regionais como vegetais, frutas e peixes. Desta forma, torna-se difícil selecionar valores de referência. Sabe-se que as concentrações mais altas ingeridas são de ^{210}Pb e ^{210}Po e as mais baixas são de ^{230}Th e ^{232}Th . O ^{226}Ra e o ^{238}U possuem concentrações ingeridas intermediárias (UNSCEAR, 2008).

O rádio é um metal pertencente à categoria de terras-raras. Existem compostos químicos naturais de ^{226}Ra (similares a compostos de sódio) como o RaCl_2 , RaBr_2 , RaI_2 e RaSO_4 cujas solubilidades em água chegam a 245 g/L, 706 g/L, 180 g/L e 0,002 g/L, respectivamente (VDOVENKO e DUBASOV, 1973).

O rádio pode estar presente nas águas em quantidades usualmente menores que 0,185 Bq/L (5 pCi/L), mas em alguns casos, este valor pode ser maior, dependendo da geologia da região. Por ser um íon bivalente, é facilmente encontrado na forma de sais de rádio que podem ser bastante solúveis em água (ATSDR, 1990 e USPHS e USEPA, 1990).

Sabe-se que o rádio está presente, em diferentes proporções, na maioria das águas consumidas e o risco associado é bem conhecido devido a sua similaridade química com o cálcio e, conseqüentemente, acúmulo nos ossos (EISENBUD e GESSELL, 1997). Cada um dos radionuclídeos presentes na água potável se difere dos outros por sua meia-vida e por suas formas de decaimento características (partículas alfa, partículas beta e/ou fótons). Estes fatores são importantes para determinar seu potencial em provocar efeitos na saúde humana (FEDERAL REGISTER, 2000).

Assim, torna-se presente o interesse em verificar as concentrações de radônio e rádio presentes em águas minerais ingeridas pela população. Os resultados obtidos são comparados com outras pesquisas no Brasil e no exterior e avaliados com relação aos limites estabelecidos pelas autoridades no Brasil, considerando a Portaria N° 518/2004 do Ministério da Saúde (MINISTÉRIO DA SAÚDE, 2005).

1.1 MOTIVAÇÕES

O estudo das concentrações de radônio no ar, em solo e nas águas é foco de interesse de organismos internacionais. Por esta razão, o Laboratório de Radiações Ionizantes da UTFPR, desde 2003, tem realizado medidas destas concentrações em parceria com o Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear (CDTN / CNEN) e o Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD / CNEN).

As pesquisas relacionadas às concentrações de gás radônio *indoor* têm sido realizadas na UTFPR com o uso de câmaras de difusão e detectores CR-39 (*allyldiglycolcarbonate* - ADC). As medidas relacionadas com estas concentrações em solo e água são realizadas com o uso do AlphaGUARD (*SAPHYMO GmbH*), um equipamento eletrônico de medidas instantâneas. Em 2010, o laboratório adquiriu outro equipamento eletrônico, o RAD7 (*DurrIDGE Company*) para medidas de concentração de radônio em ar, água e solo devidamente equipado com dispositivos especiais para estes fins.

O grupo de pesquisa possui dois projetos aprovados pela Fundação Araucária e já concluídos: “Avaliação da concentração de ^{222}Rn no ar em relação aos materiais de construção e solos do Estado do Paraná” e “NORM: Contaminação pelo ^{222}Rn e seus filhos em materiais de construção, solo e água”. Este grupo de pesquisa publicou trabalhos que estão listados no Apêndice A desta tese.

Além das medidas de concentração de atividade de radônio, em 2009 o grupo de pesquisa iniciou estudos das concentrações de atividade de rádio em águas, ao considerar que o rádio, por ser um emissor de partículas alfa, quando ingerido pode ser prejudicial à saúde. Um exemplo interessante é que no início do século XX, o rádio foi amplamente utilizado para a pintura de ponteiros de relógio para que brilhassem no escuro. Nesta atividade os pintores passavam a ponta do pincel na boca para afinar o traço. Isto fazia com que o rádio fosse depositado na boca do indivíduo. Em estudos posteriores foi verificado que estes pintores apresentaram efeitos que foram relacionados a sua exposição ao rádio. Entre estes efeitos pode-se citar: anemia, catarata, fratura nos dentes, câncer e morte (USPHS e USEPA, 1990; VIETROGOSKI, 2013).

O Brasil, considerando toda a sua extensão, possui poucas medidas da concentração de atividade de radônio e rádio. Estudos destas concentrações no Estado do Paraná, realizados pelo grupo desde 2003, ainda são insuficientes para suprir a necessidade de conhecer estas concentrações na região. A necessidade de mais estudos relacionados às concentrações de radônio e rádio é verificada quando se leva em consideração que o solo em algumas regiões deste Estado, e inclusive do Brasil como um todo, é rica em rochas graníticas, e estas são conhecidas por apresentarem alta concentração de rádio em sua composição.

A necessidade de medidas das concentrações de atividade de emissores alfa em águas destinadas ao consumo humano é reconhecida pela Organização Mundial de Saúde (WHO, 2011). Este fato mostra que estudos relacionados com a concentração de rádio em água consumida pela população são importantes, considerando o risco potencial associado à ingestão de altas concentrações deste elemento.

Desta forma, o presente trabalho pretende contribuir de forma significativa para a compilação de dados referentes a concentração de atividade de rádio em águas minerais disponíveis à venda em diversas regiões do Brasil, tornando-se parte da base de dados para que os organismos regulamentadores possam avaliar a real situação no país quanto esta problemática.

1.2 OBJETIVOS

1.2.1 Objetivos gerais

Desenvolver a técnica de medição de concentração de atividade de ^{226}Ra com o uso do detector de radônio RAD7 (DurrIDGE Company) em águas minerais potáveis engarrafadas disponíveis à venda no Brasil.

1.2.2 Objetivos específicos

Os objetivos específicos deste trabalho compreendem:

- Avaliar o nível de concentração de atividade de ^{226}Ra em águas potáveis minerais engarrafadas disponíveis no mercado do Brasil seguindo protocolo padrão do manual RAD7 RAD H₂O.
- Estudar a influência da concentração do ^{222}Rn no ar ambiental e verificar a eficiência do processo de limpeza, por meio do carvão ativado, no limite superior da sensibilidade do equipamento RAD7.
- Desenvolver a técnica que permite atingir o limite superior da sensibilidade do equipamento RAD7 seguindo o protocolo padrão do manual e executar as medidas de amostras de água.
- Estudar a natureza dos processos que limitam a sensibilidade do detector RAD7 e avaliar o nível mínimo de concentração de atividade de ^{226}Ra possível de ser atingido com o aumento do tempo de medida.
- Avaliar o nível mínimo de concentração de atividade de ^{226}Ra possível de ser atingido com evaporação da amostra.
- Executar medidas da concentração de atividade de rádio em amostras de água e testar a metodologia proposta.

1.3 ESTRUTURA DA TESE

O capítulo 1 apresenta a introdução, onde o tema do trabalho é apresentado em linhas gerais, os objetivos gerais e específicos e as motivações, onde são colocados os fatos que serviram de estímulo para o desenvolvimento deste trabalho.

O capítulo 2 apresenta a fundamentação teórica do trabalho, onde assuntos de conhecimento da comunidade científica desta área de pesquisa foram apresentados em linhas gerais e assuntos específicos desta tese foram apresentados de forma mais detalhada. Neste capítulo é realizada também uma revisão de literatura que apresenta os principais trabalhos relacionados com a presente pesquisa.

O capítulo 3 apresenta a metodologia da pesquisa, onde se expõe a classificação da mesma, as limitações pertinentes e os materiais e métodos utilizados.

O capítulo 4 apresenta os resultados, análise e discussão sobre os mesmos, tendo como base o referencial teórico.

O capítulo 5 apresenta as conclusões do trabalho e sua correlação com os objetivos propostos.

Ao final do trabalho são mostradas as referências e em seguida os apêndices.

2 FUNDAMENTAÇÃO TEÓRICA

2.1 DECAIMENTO RADIOATIVO, MEIA-VIDA E ATIVIDADE

Os radionuclídeos podem ser definidos como núcleos atômicos instáveis capazes de emitir fótons, elétrons, partículas alfa ou outras partículas ionizantes espontaneamente, ou seja, sem interação com outras partículas.

Decaimento radioativo é a desintegração de um núcleo através da emissão de energia em forma de partículas. Um processo de decaimento pode ser caracterizado pela sua taxa de desintegração dN/dt (s^{-1}), constante de decaimento λ (s^{-1}) ou tempo de meia-vida $T_{1/2}$ (s). A probabilidade de um núcleo decair dentro de um pequeno intervalo de tempo dt é λdt . A constante de decaimento, juntamente com o número de átomos do isótopo radioativo na amostra (N), determinam a taxa de decaimento, conforme mostrado na Equação 1 (HEYDE, 1999).

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

O decaimento radioativo é um processo estatístico, desta forma, não se pode afirmar coisa alguma sobre um dado núcleo em particular e se deve trabalhar em termos de probabilidades. Quando a Equação 1 é integrada considerando condições iniciais $N(t=0)=N_0$, obtém-se como resultado a Equação 2. Esta é considerada a lei fundamental do decaimento radioativo (HEYDE, 1999).

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

O tempo de meia-vida da amostra pode ser definido, como o tempo para que o número de átomos radioativos se reduza à metade do valor original. Ou seja, $N=N_0/2$. Esta definição leva à Equação 3 (HEYDE, 1999).

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} \quad (3)$$

Atividade A de uma amostra radioativa pode ser definida como a taxa de transformações nucleares, ou seja, o número de transformações ou emissões a cada segundo. As unidades utilizadas para atividade radioativa são o bequerel (Bq) e o curie (Ci), estas

unidades correspondem a uma desintegração por segundo e $3,7 \times 10^{10}$ desintegrações a cada segundo, respectivamente. Bequerel é a unidade utilizada no Sistema Internacional de Medidas.

De forma análoga, a atividade de uma amostra radioativa no tempo t ($A=dN(t)/dt$) pode ser descrita pela Equação 4, quando considerado, $A = \lambda N$ e $A_0 = \lambda N_0$, ou seja, $A/A_0 = N/N_0$.

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (4)$$

2.1.1 Cadeias de decaimento e equilíbrio secular

As cadeias de decaimento possuem núcleos, que produzem novos núcleos, que sucessivamente também podem decair, até que cheguem a um produto de decaimento estável. Desta forma, tem-se uma cadeia geral de decaimento dada pela Expressão 5.



Esta cadeia é caracterizada por um conjunto de equações diferenciais representadas nas Equações 6, 7 e 8.

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \quad (6)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \quad (7)$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \quad (8)$$

⋮

Para a resolução deste sistema, utiliza-se a teoria da resolução acoplada para equações diferenciais lineares com coeficientes constantes λ_1 . A solução geral é então obtida pelo sistema representado nas Equações 9 a 11.

$$N_1(t) = a_{11}e^{-\lambda_1 t} \quad (9)$$

$$N_2(t) = a_{21}e^{-\lambda_1 t} + a_{22}e^{-\lambda_2 t} \quad (10)$$

$$N_3(t) = a_{31}e^{-\lambda_1 t} + a_{32}e^{-\lambda_2 t} + a_{33}e^{-\lambda_3 t} \quad (11)$$

$$\vdots$$

As condições iniciais das equações 9, 10 e 11 são dadas nas equações 12 e 13, e se obtém a Equação 14.

$$a_{11} = N_1(t = 0) \quad (12)$$

$$\sum_{i=1}^k a_{ki} = 0 \quad (13)$$

Desta forma, podem-se obter os coeficientes a_{ki} substituindo a solução geral (Equações 9 a 11) na equação diferencial, levando a um conjunto de equações algébricas com coeficientes a_{ki} . Como exemplo, para o caso particular de $N_2(t)$ se obtém as Equações 14 a 16.

$$-\lambda_1 a_{21} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 a_{22} e^{-\lambda_2 t} = \lambda_1 a_{11} e^{-\lambda_1 t} - \lambda_2 a_{21} e^{-\lambda_1 t} \lambda_2 - a_{22} e^{-\lambda_2 t} \quad (14)$$

$$a_{21} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} a_{11} \quad (15)$$

$$a_{22} = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} a_{11} \quad (16)$$

Assim, obtém-se a solução geral dada na Equação 17.

$$a_{ki} = \frac{\lambda_{k-1}}{\lambda_k - i} a_{k-1 i} \quad (17)$$

Algumas situações específicas acontecem nas cadeias radioativas. Uma destas é o chamado equilíbrio secular e acontece quando se satisfazem as condições apresentadas nas Equações 18 e 19.

$$\lambda_1 \simeq 0 \quad (18)$$

$$\lambda_1 \ll \lambda_2 \quad (19)$$

O rádio e o radônio se encaixam neste caso e as expressões para $A_1(t)$ e $A_2(t)$ agora são dadas por (equações 20 e 21):

$$A_1(t) = A_1^0 \quad (20)$$

$$A_2(t) = A_1^0(1 - e^{-\lambda_2 t}) \quad (21)$$

No caso do equilíbrio do ^{226}Ra e ^{222}Rn , a atividade de rádio é A_1 e de radônio é A_2 . A atividade $A_1(t)$ é muito pequena, porém constante. A atividade $A_2(t)$ atinge o equilíbrio quando o tempo é muito maior que o tempo de meia-vida do filho, neste caso $e^{-\lambda_2 t} \approx 0$ e $e^{-\lambda_2 t} \approx 0$ e então $A_2(t) \approx A_1^0 A_2(t) \approx A_1^0$, quando em equilíbrio.

2.2 SUBSTÂNCIAS RADIOATIVAS NATURAIS

A radioatividade natural pode ser originada tanto de fontes cósmicas quanto de elementos químicos, na própria crosta terrestre. A radioatividade na Terra inclui três categorias principais (EISENBUD e GESSELL, 1997; UNSCEAR, 2000):

- (1) Radionuclídeos primários – possuem tempos de meia-vida suficientemente longos que sobrevivem desde a sua criação;
- (2) Radionuclídeos secundários – derivam dos radionuclídeos primários;
- (3) Radionuclídeos cosmogênicos – são continuamente criados pelo bombardeamento de núclídeos estáveis pelos raios cósmicos na atmosfera.

Os radionuclídeos naturais podem ocorrer isoladamente ou como componentes de três principais cadeias de elementos radioativos: série do ^{238}U , série do ^{232}Th e série do Actínio que se origina com o ^{235}U (EISENBUD e GESSELL, 1997). As Tabelas 1, 2 e 3 foram montadas por Correa (2011) com base nos dados de NNDC (2011) e mostram as séries de decaimento acima mencionadas, os tempos de meia-vida e os tipos de emissões que ocorrem.

É importante verificar os tipos de emissões e os tempos de meia-vida dos radionuclídeos presentes nestas cadeias de decaimento porque estas informações são utilizadas para a determinação relativa da contribuição dos radionuclídeos na deposição de dose no corpo humano, como por exemplo, nos brônquios. Nestes, o ^{222}Rn , ^{220}Rn e seus produtos de decaimento são os principais responsáveis pela deposição de dose (UNSCEAR, 2000).

As Tabelas de 1 a 3 mostram que tanto o urânio, quanto o rádio e o radônio fazem parte das séries radioativas naturais. Sendo assim, a seguir será apresentada uma breve descrição desses elementos químicos.

Tabela 1 -Série do ^{238}U - Dados do National Nuclear Data Center

Nuclídeo	Meia-vida	Principais radiações
^{238}U	$4,47 \times 10^9$ anos	α
^{234}Th	24,1 dias	β
^{234}Pa	1,16 minutos	β
^{234}U	$2,455 \times 10^5$ anos	α
^{230}Th	$7,54 \times 10^4$ anos	α
^{226}Ra	1600 anos	α
^{222}Rn	3,8235 dias	α
^{218}Po	3,098 minutos	α
^{214}Pb (99,98%) ^{218}At (0,02%)	26,8 minutos - 1,5 segundos	$\beta - \alpha$
^{214}Bi	19,9 minutos	β
^{214}Po (99,98%) ^{210}Tl (0,02%)	164,3 μs - 1,3 minutos	$\alpha - \beta$
^{210}Pb	22,2 anos	β
^{210}Bi	5,01 dias	β
^{210}Po (~100%) ^{206}Tl (0,00013)%	138,376 dias - 4,202 minutos	$\alpha - \beta$
^{206}Pb	Estável	Nenhuma

Fonte: Corrêa (2011)

Tabela 2 -Série do ^{232}Th - Dados do National Nuclear Data Center

Nuclídeo	Meia-vida	Principais radiações
^{232}Th	$1,4 \times 10^{10}$ anos	α
^{228}Ra	5,75 anos	β
^{228}Ac	6,15 horas	β
^{228}Th	1,9116 anos	α
^{224}Ra	3,6319 dias	α
^{220}Rn	55,6 segundos	α
^{216}Po	0,145 segundos	α
^{212}Pb	10,64 horas	β
^{212}Bi	60,55 minutos	β
^{212}Po (64%) ^{208}Tl (36%)	0,299 μs - 3,053 minutos	$\alpha - \beta$
^{208}Pb	Estável	Nenhuma

Fonte: Corrêa (2011)

Tabela 3 -Série do actínio - Dados do National Nuclear Data Center

Nuclídeo	Meia-vida	Principais radiações
^{235}U	$7,04 \times 10^8$ anos	α
^{231}Th	25,5 horas	β
^{231}Pa	$3,276 \times 10^4$ anos	α
^{227}Ac	21,772 anos	β
^{223}Fr (1,38%) ^{227}Th (98,62%)	22,00 minutos - 18,68 dias	$\alpha - \beta$
^{223}Ra	11,43 dias	α
^{219}Rn	3,96 segundos	α
^{215}Po	1,781 ms	α
^{211}Pb (~100%) ^{215}At (0,00023%)	36,1 minutos - 0,10 ms	$\alpha - \beta$
^{211}Bi	2,14 minutos	α, γ
^{207}Tl (99,73%) ^{211}Po (0,273%)	4,77 minutos - 0,516 segundos	$\alpha - \beta$
^{207}Pb	Estável	Nenhuma

Fonte: Corrêa (2011)

Os radionuclídeos de origem terrestre que existem naturalmente são chamados radionuclídeos primordiais e existem em diferentes concentrações em todo o meio ambiente, incluindo o corpo humano (UNSCEAR, 2008).

A água é um agente transportador e de interação dos radionuclídeos com diferentes partes da troposfera: solos, sedimentos, rochas, biota e também o ar estão continuamente trocando seus compostos radioativos com a água (POSCHL e NOLLET, 2006).

Poschll e Nollet (2006) afirmam em seu texto que a presença de radionuclídeos em diferentes concentrações nas águas superficiais é correlacionada com a existência de algum acoplamento entre diferentes compartimentos geológicos. As águas superficiais são acopladas aos aquíferos subsuperficiais, solos e à atmosfera, permitindo assim a incorporação de vários radionuclídeos por diferentes maneiras. Alguns radionuclídeos dissolvidos nos aquíferos subterrâneos podem atingir as águas superficiais; outros radionuclídeos podem ser diretamente incorporados nas águas superficiais por meio da deposição pela atmosfera. Uma grande quantidade de radionuclídeos nos sistemas aquáticos tem sua origem nos solos, de onde podem ser transportados para as águas superficiais por escoamento ou lixiviação das águas subterrâneas.

Um aspecto importante que influencia a quantidade de um radionuclídeo na água é a meia-vida. Espécies dissolvidas com tempos de meia-vida curtos decairão até atingir o equilíbrio secular com seus pais. O desequilíbrio inicial de outros radionuclídeos de meia-vida longa persistirá ao longo de um tempo similar a sua respectiva meia-vida. Quando dois radionuclídeos possuem comportamentos químicos semelhantes, como ^{228}Ra e ^{224}Ra , o de meia-vida menor tende a permanecer em equilíbrio com seus precursores (POSCHLL e NOLLET, 2006).

A presença de radionuclídeos nas águas subterrâneas depende da presença e da solubilidade dos nuclídeos precursores. Mas, a ocorrência e a distribuição dos radionuclídeos precursores em solução não necessariamente indica a presença do filho na solução. Como exemplo pode ser citada a concentração de ^{238}U e ^{226}Ra em que o urânio tende a ser pouco móvel em águas subterrâneas com pouco oxigênio e o rádio tende a ser mais móvel em águas subterrâneas com altas concentrações de sólidos totais (USEPA, 2000).

As águas continentais provêm da precipitação e escorrem sobre a terra ou se infiltram para a subsuperfície em uma cadeia de processos conhecidos como ciclo hidrológico. Nem todas as águas na subsuperfície são consideradas águas subterrâneas; este

termo é usado para águas na subsuperfície fluindo para um repositório, e assim, sob o efeito de uma pressão maior que a pressão atmosférica. As águas subterrâneas compõem apenas uma pequena fração da quantidade de água total na Terra: aproximadamente 0,6%. Entretanto, as águas subterrâneas representam a maior fonte de água doce e estão contidas em formações geológicas chamadas aquíferos, que são suficientemente permeáveis para permitir o fluxo de água. Areias e cascalhos são os materiais mais comuns em aquíferos, mas rochas ígneas e metamórficas podem formar aquíferos quando fraturadas ou porosas (POSCHLL e NOLLET, 2006).

De acordo com Poschll e Nollet (2006), os radionuclídeos naturais podem ser uma ferramenta útil na identificação das águas subterrâneas de diferentes fontes. É comum o fracionamento isotópico entre as águas subterrâneas e o substrato e essas assinaturas isotópicas podem ser utilizadas na determinação das interações prévias acontecidas entre as águas e as rochas. As razões isotópicas naturais podem, então, gerar informações sobre a fonte da água subterrânea, mistura de diferentes massas de águas subterrâneas, padrões de fluxo e interações entre as rochas e as águas.

Alguns trabalhos estudaram a presença de radionuclídeos naturais em águas potáveis no sul da Suécia e a eficiência do processo de purificação para vários radionuclídeos. Foi verificado que uma combinação de floculação com $\text{Al}_2(\text{SO}_4)_3$ e FeCl_3 com posterior filtração possui 85% de eficiência na remoção dos isótopos de urânio e tem uma eficiência maior que 90% na remoção dos isótopos de tório e polônio (POSCHLL e NOLLET, 2006).

Poschll e Nollet (2006) afirmam que uma dose não negligenciável pode ser recebida pela ingestão de água potável com grande conteúdo radioativo. O cálculo das doses depende do consumo anual de água, estimado em torno de 2L/dia (WHO, 2011). Isto é especialmente relevante no caso do ^{222}Rn e ^{226}Ra . Estimativas de dose são feitas utilizando as concentrações medidas e os fatores de conversão publicados pela UNSCEAR (2008). O item 2.3.1 apresenta mais informações sobre o cálculo da dose.

Palomo *et. al* (2007), em sua pesquisa medindo a radioatividade em águas engarrafadas na Espanha, selecionaram amostras das águas mais consumidas na Catalúnia. A radioatividade alfa das amostras de seu experimento foi medida utilizando um contador cintilador de ZnS. Os resultados mostraram que 16% das amostras apresentaram concentração de atividade alfa total entre 0,14 e 0,86 Bq/L, ou seja, maior que o limite normativo de 0,1 Bq/L. A migração dos radionuclídeos do solo para as águas subterrâneas depende das propriedades do solo e da hidrogeologia da região. Desta forma, os autores associaram as altas

concentrações à geologia da fonte. Estas amostras são da Girona e os aquíferos desta região são principalmente formados por rochas graníticas, as quais contêm grande quantidade de urânio.

2.2.1 Urânio

O urânio normalmente encontrado na natureza consiste de três isótopos que possuem número de massa 234, 235, e 238. Na crosta terrestre, o ^{238}U está presente em uma proporção de 99,28%, o ^{234}U em uma proporção de 0,0058% e o ^{235}U , integrante da série do actínio, está presente em uma proporção de 0,71% (EISENBUD e GESSELL, 1997).

Este elemento químico pode ser encontrado em rochas e solos, variando apenas a sua concentração nas mesmas. Devido a isso, o urânio está presente nos alimentos e nos tecidos humanos. Em média, a ingestão anual de urânio é de 13 Bq (320 pCi). A ingestão deste elemento químico através da água pode ser uma pequena ou grande fração do total, dependendo das concentrações nos suprimentos de água locais (EISENBUD e GESSELL, 1997).

2.2.2 Rádio

O rádio foi descoberto em 1898 por Marie Currie, renomada física que dispensa apresentações. Este elemento possui número atômico 88, é um metal do grupo dos alcalinos terrosos, possui luminescência e está presente em minerais de urânio. Comercialmente, o rádio é encontrado na forma de brometo ou cloreto. São conhecidos 25 isótopos do rádio e o mais comum é o ^{226}Ra (LANL, 2012; USPHS e USEPA, 1990). Este isótopo é o objeto de estudo do presente trabalho.

O ^{226}Ra , emissor alfa de meia-vida 1622 anos, decai para o ^{222}Rn . O decaimento do ^{222}Rn é seguido por várias desintegrações alfa e beta de seus subprodutos. Após seis etapas de decaimento, nas quais são produzidos isótopos de meia-vida que variam de $1,6 \times 10^{-4}$ s até 26,8 minutos, é produzido o ^{210}Pb que possui meia-vida de 22 anos. Este nuclídeo decai até o ^{210}Bi

que produz o ^{210}Po (meia-vida de 138 dias), o qual decai por emissão alfa, produzindo o ^{206}Pb , estável. O ^{226}Ra , sendo um emissor alfa, não contribui diretamente para a produção de radiação gama no meio ambiente, mas contribui indiretamente por meio de seus produtos de decaimento que emitem esse tipo de radiação (EISENBUD e GESSELL, 1997).

Quando ocorre a exposição a uma substância como o rádio, diversos fatores determinam quais efeitos poderão ocorrer e também a severidade destes efeitos. Esses fatores incluem a dose, a duração da exposição, a maneira de exposição (inalação, ingestão ou contato), outros agentes aos quais o indivíduo está exposto e as características individuais como idade, sexo, características nutricionais, estilo de vida e estado de saúde (USPHS e USEPA, 1990).

No caso do rádio, como para quaisquer radionuclídeos, é importante considerar que além das vias normais de exposição que devem ser consideradas para produtos químicos tóxicos como a inalação, ingestão, dérmica e ocasionalmente a parenteral, devem ser consideradas as exposições internas e externas devido às emissões de partículas alfa e beta e de radiação gama. E estas emissões radioativas são consideradas responsáveis pela maior parte dos efeitos deletérios observados em pessoas expostas. O rádio pode causar efeitos adversos à saúde como anemia, catarata, fraturas de dentes, câncer e morte (USPHS e USEPA, 1990).

O rádio, por ser quimicamente similar ao cálcio, é absorvido do solo pelas plantas e passado para a cadeia alimentar dos humanos. A concentração de rádio nos alimentos varia conforme sua concentração no solo. Parte do rádio ingerido é eliminada através do intestino e parte é depositada nos ossos, que contém de 70 a 95% do rádio presente no corpo. Existe relação entre a concentração de rádio no corpo humano e a concentração na água ingerida (EISENBUD e GESSELL, 1997).

Quando o rádio é inalado, uma pequena quantidade pode permanecer nos pulmões por meses, mas esse elemento gradativamente vai entrar na corrente sanguínea e ser carregado para diversas partes do organismo, especialmente os ossos. Pequenas quantidades de rádio serão encontradas nas fezes e urina, mesmo após passados diversos meses da exposição (USPHS e USEPA, 1990). Já quando ingerido juntamente com a água ou alimento, cerca de 80% do rádio é prontamente eliminada juntamente com as fezes. Os outros 20%, entram na corrente sanguínea e são levados para diversas partes do organismo, principalmente os ossos. Diariamente, uma parte deste rádio será eliminada nas fezes e na urina. Alguns estudos, baseados nas taxas de excreção em áreas onde os alimentos ou a água são considerados

fontes predominantes de rádio, sugerem que a absorção do rádio por meio da ingestão de água é maior que pela ingestão de alimentos. Quando analisados os efeitos devido à exposição por ingestão de rádio, deve ser considerado não apenas este, mas todos os subprodutos de seu decaimento, que também podem produzir efeitos deletérios (USPHS e USEPA, 1990).

Não existem informações sobre os efeitos letais do rádio devido à exposição aguda por ingestão, mas existem relatos de diversas mortes por câncer nos ossos que ocorreram em indivíduos expostos por longos períodos ao ^{226}Ra e ^{228}Ra . Como já mencionado, vários estudos relacionados a ingestão do rádio foram feitos com pintores de ponteiros de relógio, que no exercício da atividade ingeriram quantidades suficientes de rádio para que ocorresse a morte com poucos anos de profissão, geralmente 2 anos. As causas das mortes observadas nesses indivíduos foram anemia, necrose da mandíbula e sarcoma osteogênico (USPHS e USEPA, 1990).

Por meio de estudos realizados com estes pintores foi possível relacionar a distribuição do rádio nos ossos devido aos osteosarcomas adquiridos e a similaridade química do rádio com o cálcio. Esta similaridade faz com que o rádio se deposite nos ossos em áreas em que há formação mineral óssea, em outras superfícies ósseas e, eventualmente, se move para as profundezas de osso compacto como uma nova matriz óssea. Nesta deposição, o ^{224}Ra decai rapidamente, depositando seus produtos de decaimento no osso. Já o ^{226}Ra permanece no esqueleto por tempo indeterminado. O rádio não pode ser metabolizado, mas quando os sais de rádio são depositados em sistemas biológicos, esses compostos podem ser dissociados de acordo com sua solubilidade no meio (USPHS e USEPA, 1990).

Sarcomas ósseos são conhecidos por serem induzidos tanto pelo ^{226}Ra quanto pelo ^{228}Ra . Os carcinomas dos ossos próximos às células aéreas mastóides ou seios paranasais são conhecidos por serem induzidos pela exposição ao ^{226}Ra . Acredita-se que estes carcinomas são causados pelo radônio, gás oriundo do decaimento do ^{226}Ra . Este gás migra da localização onde se formou para as células aéreas nestas estruturas (USPHS e USEPA, 1990).

A concentração de rádio em águas é usualmente controlada por reações de adsorção-dessorção com os minerais e rochas e pela solubilidade dos minerais que contêm rádio. As concentrações de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas potáveis é geralmente baixo, mas em algumas regiões específicas estes valores são maiores devido às concentrações mais altas de rádio encontradas na geologia da região. Na água, o rádio está presente na forma de um íon divalente (Ra^{2+}) e possui propriedades químicas similares ao bário, cálcio e estrôncio. A

solubilidade dos sais de rádio normalmente aumenta com o aumento do pH (USPHS e USEPA, 1990).

De acordo com Poschll e Nollet (2006), alguns estudos relacionados com a concentração de ^{226}Ra nos sistemas pluviais indicam que a mesma é geralmente pequena, entretanto, maior que a concentração de tório. Isto acontece devido à tendência daqueles radionuclídeos se associarem, por adsorção, à superfície do material particulado em suspensão na água.

Existe um aumento significativo nas concentrações de ^{226}Ra em dissolução em estuários que está relacionado com o aumento da salinidade devido à mistura de águas doces e salgadas. No caso do rádio, a explicação está relacionada com uma alteração no comportamento químico, com um significativo aumento na dessorção desse radionuclídeo, inicialmente ligado à superfície das partículas transportadas pelos rios, quando essas partículas entram em contato com as águas estuarinas de alta força iônica. O aumento na concentração de íons concorrentes nos processos de adsorção às superfícies das partículas induz a um decréscimo nos coeficientes de adsorção do rádio (POSCHL e NOLLET, 2006).

Os mesmos autores afirmam que as concentrações de ^{226}Ra em águas potáveis são bastante variáveis. Alguns estudos nos Estados Unidos mostraram que as águas de poços podem chegar às torneiras com concentrações de 0,18 Bq/L de ^{226}Ra . A água potável pode conter concentrações relevantes de ^{222}Rn . Aproximadamente um quarto das águas nos Estados Unidos contém mais de 70Bq/L de ^{222}Rn , e em alguns casos foram encontradas concentrações de 370Bq/L. É interessante ressaltar que o uso doméstico de águas potáveis pode levar o ^{222}Rn a se dissolver na atmosfera, provocando altas concentrações *indoor* (POSCHLL e NOLLET, 2006).

Concentrações de ^{222}Rn maiores que 800 Bq/L foram observadas em águas potáveis austríacas em áreas graníticas, e para estas águas, foram medidas concentrações de 0,5 Bq/L de ^{226}Ra . Na Espanha, foram observadas concentrações de ^{226}Ra maiores que 0,6Bq/L em águas minerais engarrafadas; para o ^{222}Rn foi medido um máximo de 52 Bq/L. O ^{226}Ra deveria ser removido da água em estações de tratamentos. Em muitos casos, entretanto, as águas de poço não são purificadas antes do consumo e as águas minerais são engarrafadas sem tratamento específico algum (POSCHLL e NOLLET, 2006).

O trabalho de Ricardo (2012) fez medidas de ^{226}Ra em águas de aquíferos da Região Metropolitana de Belo Horizonte utilizando o equipamento RAD7 juntamente com o sistema

proposto neste trabalho para diminuir o *background*. Os valores encontrados para estas águas ficaram entre $2,0 \cdot 10^{-2} \pm 3,9 \cdot 10^{-2}$ e $6,0 \cdot 10^{-2} \pm 9,8 \cdot 10^{-2}$ Bq/L.

Os resultados dos experimentos de Martin Sanchez *et. al* (1999) mostraram que das 43 marcas de águas minerais testadas da França, Espanha e Portugal, 14 apresentaram valores acima de 0,1 Bq/L, limite estabelecido na Espanha, conforme mostra a Tabela 4. Essas 14 amostras com valores acima de 0,1Bq/L de concentração de atividade total alfa apresentaram a existência de ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{228}Ac e também de ^{226}Ra . Todavia, as normas espanholas estabelecem um limite de dose equivalente de 5 mSv/ano e este limite não foi ultrapassado. Os resultados obtidos por este grupo mostraram que apesar de todas as águas serem consideradas potáveis, deve ser recomendada uma prática que forneça ao consumidor informações mais detalhadas sobre a concentração de atividade e a dose de cada marca comercial.

Os isótopos de rádio podem ser determinados em amostras de água por meio de vários métodos como espectroscopia gama, espectroscopia alfa e beta, método de emissão de radônio e contagem de cintilação líquida (SHUKTOMOVA e RACHKOVA, 2011). O método de cintilação líquida alfa em conjunto com rede neural artificial (*artificial neural network* – ANN) e mínimos quadrados parciais (*partial least squares* – PLS) permite determinar níveis de concentração de atividade de ^{226}Ra em amostras de águas com concentração de atividade de 0,06 Bq/L a 0,135 Bq/L e o erro associado a estas medidas fica em torno de 26,09% (KHAYATZADEH MAHANI *et. al.*, 2008).

Kleinschmidt e Akber (2008), em seu trabalho, utilizaram um método de emissão de ^{222}Rn para determinar a quantidade de ^{226}Ra . Nessa pesquisa as amostras foram preparadas pela redução do volume da amostra de 1000 mL para 15 mL por evaporação. As amostras concentradas foram transferidas para garrafas evitando a saída do ^{222}Rn ; estas amostras foram armazenadas por 15 dias para atingir o equilíbrio com o ^{226}Ra . Os experimentos foram conduzidos utilizando um equipamento de cintilação líquida (Packard TriCarb 3170TR/SL). O nível de detecção mínimo de ^{226}Ra utilizando contagem de cintilação líquida combinado com o processo de evaporação é estimado em 2 mBq/L ou $0,54 \cdot 10^{-13}$ g/L.

Tabela 4 - Concentrações totais alfa para águas minerais engarrafadas da Espanha (S), Portugal (P) e França (F).

Marca	Concentração de Atividade alfa total (Bq/L)*
Agua de Almedijar ^S	< 0.05
Agua do Castelo ^P	<0.091
Agua de Mondariz ^S	0.8 (2)
Agua de Mondariz ^S (withgas)	1.2 (3)
Agua del Rosal ^S	0.4 (1)
Agua São Silvestre ^P	< 0.007
Agua de Sierra ^S	< 0.18
Agua de Sousas ^S	0.09 (4)
Alardo ^P	0.008 (3)
Aricio ^P	< 0.007
Cabreiroa ^S	1.68 (4)
Campilho ^P	0.09 (2)
Carvalhelhos ^P	< 0.007
Castello de Vide ^P	< 0.08
El Cañar ^S	< 0.07
Evian ^F	< 0.007
Fonsana ^S	0.05 (2)
Font Vella ^S	0.18 (4)
Fontdor ^S	0.11 (3)
Fontecabras ^S	< 0.089
Fonter ^S	< 0.06
Fonxesta ^S	0.07 (2)
Fuensansta ^S	2.3 (9)
FuenteLiviana ^S	< 0.06
Lanjarón ^S	< 0.05
Los Riscos ^S	0.39 (8)
Lunares ^S	< 0.12
Luso ^P	0.22 (5)
Melgaço ^P	1.9 (4)
Neval ^S	< 0.14
Panticosa ^S	0.07 (2)
PedrasSalgadas ^P	8.4 (1.6)
Perreier ^F	< 0.10
Pizoes ^P	< 0.16
Pryca ^S	0.18 (4)
Serrana ^P	< 0.02
Simago ^S	< 0.092
Solan de Cabras ^S	< 0.08
Solares ^S	0.39 (9)
Vale de Cavalos ^P	< 0.07
Valtorre ^S	< 0.08
Vichy Catalán ^S	7.8 (1.7)
Viladrau ^S	0.021 (5)

*Os números entre parênteses representam as incertezas (1σ) associadas ao último algarismo significativo.

Fonte: Martin Sanchez *et. Al* (1999)

No Brasil, Godoy, Amaral e Godoy (2001) mediram a concentração de radionuclídeos naturais em águas minerais brasileiras. As concentrações de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb variaram de 0,002 a 0,22 Bq/L, 0,013 a 1,02 Bq/L e 0,011 a 0,51 Bq/L, respectivamente. Os valores médios encontrados para as concentrações de atividade destes radionuclídeos nas

águas analisadas nas diversas regiões do país e no país como um todo são apresentados na Tabela 5.

Tabela 5 – Valores médios da concentração de atividade de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb em águas minerais brasileiras para as diversas regiões do país e para o Brasil como um todo

Região	^{226}Ra (Bq L ⁻¹)	^{228}Ra (Bq L ⁻¹)	^{210}Pb (Bq L ⁻¹)
Sudeste	0.029	0.102	0.082
Nordeste	0.02	0.058	0.029
Sul	0.008	0.013	0.049
Centroeste	0.008	0.012	0.02
Norte	0.083	0.385	0.102
Brasil	0.027	0.097	0.066

Fonte: Godoy, Amaral e Godoy (2001)

2.2.3 Radônio

As séries do ^{238}U e ^{232}Th têm como produtos de decaimento o ^{222}Rn e ^{220}Rn , respectivamente. O último é conhecido como torônio por pertencer à série do tório. O radônio é um elemento radioativo, filho do rádio, emissor de partículas alfa. Por ser um gás, quando inalado, representa risco potencial de provocar câncer de pulmão (UNSCEAR, 2000). Os isótopos do radônio são gases nobres, apresentando-se como moléculas monoatômicas não-polares, e quimicamente inertes. O isótopo ^{222}Rn com meia-vida de 3,82 dias tem mais chances de escapar das rochas ou águas para a atmosfera que os seus isótopos de meia-vida mais curta (EISENBUD e GESSELL, 1997).

O radônio pode ser encontrado em solos, rochas, águas e ar. Juntamente com seus produtos de decaimento de meia-vida curta, são considerados pela UNSCEAR, 2000 os maiores contribuintes para a exposição humana a fontes de radiação natural. O risco associado à inalação do gás radônio em minas é conhecido há bastante tempo. Porém, a partir dos anos 1970, as pesquisas relacionadas à exposição ambiental ao gás radônio foram mais relevantes. Nesse período, pesquisadores perceberam que a concentração de radônio em ambientes fechados poderia ser elevada (UNSCEAR, 2000).

De acordo com a Organização Mundial de Saúde (WHO, 2009), durante várias décadas têm-se desenvolvido pesquisas na tentativa de se entender os mecanismos de transportes relacionados ao gás radônio. Na década de 1950, foram observadas altas

concentrações de radônio em águas de poços. Na metade da década de 1970, a emissão de radônio de materiais de construção foi considerada um problema em algumas áreas, devido ao uso de materiais de construção com altas concentrações de rádio em sua composição. Em 1978, foram identificadas casas com altas concentrações de radônio associadas à emissão do mesmo dos materiais de construção ou das águas de poço.

Órgãos internacionais relacionados à saúde pública, às radiações ionizantes e à física nuclear relacionam as altas concentrações de radônio em ambientes com o desenvolvimento de câncer de pulmão. Estes órgãos consideram a inalação do gás radônio e seus filhos de meia-vida curta como a segunda maior causa de câncer de pulmão no mundo, sendo a primeira o tabagismo (WHO, 2009; ICRP, 1991; UNSCEAR, 2000).

O ^{226}Ra presente em rochas e solos decai resultando em átomos de ^{222}Rn . Uma fração destes átomos de ^{222}Rn permanece nos fluidos geológicos, a maioria na água dos espaços capilares. Uma fração de radônio entra nos gases do solo, primeiramente por difusão e depois torna-se mais móvel. O ^{222}Rn atinge a atmosfera quando os gases na superfície do solo passam para a mesma (EISENBUD e GESSELL, 1997).

A concentração do gás radônio na atmosfera depende de uma série de fatores. As concentrações máximas do gás foram observadas nas primeiras horas do dia e as menores concentrações no fim da tarde, quando esta concentração chegou a um terço da máxima da manhã. Durante o ano, os níveis de ^{222}Rn tendem a ter um pico no outono e no inverno e tem concentração mínima na primavera. Esta variação é compatível com o padrão de turbulência atmosférica, que tende a ser maior na primavera. A taxa de emissão do gás radônio do solo pode aumentar durante períodos de menor pressão atmosférica. Os níveis deste gás parecem ser influenciados também pela umidade do solo. Regiões áridas apresentaram maiores concentrações de gás radônio (EISENBUD e GESSELL, 1997).

A presença de ^{226}Ra nas águas depende de diversas variáveis, incluindo a temperatura e pressão, e o comportamento de seu precursor na água. A quantidade de ^{226}Ra e ^{222}Rn na água depende das características geológicas dos leitos de rocha, e já se sabe que áreas contendo granito produzem águas com grandes concentrações desses radionuclídeos (POSCHLL e NOLLET, 2006).

Altas concentrações de radônio na água podem acarretar em altas concentrações no ar; assim, o radônio em águas causa exposição pela inalação do gás liberado desta água (COMMISSION RECOMMENDATION, 2001). Quando se trata da concentração de gás radônio em água de fontes, não existe uma correlação direta entre a concentração e risco

associado, devido à necessidade de avaliação de vários outros fatores como temperatura, modo e estágios de utilização da água, que possuem influência na difusão do radônio contido na água (EISENBUD e GESELL, 1997).

Níveis elevados de ^{222}Rn foram encontrados normalmente em águas subterrâneas e foram relacionados com a existência de níveis elevados de rádio na rocha precursora. Formações de rochas cristalinas, especialmente granitos, podem ser fonte de níveis elevados, enquanto que rochas sedimentares fornecem níveis menores (EISENBUD e GESSELL, 1997).

Quando o ar que contém ^{222}Rn ou ^{220}Rn em equilíbrio total ou parcial com seus produtos de decaimento é inalado, os gases inertes são amplamente exalados. Entretanto, uma fração das partículas de poeira será depositada nos pulmões. Com cada inspiração, mais poeira será depositada até um momento em que a quantidade de atividade depositada, devido aos radionuclídeos presentes na poeira, por unidade de tempo é igual à quantidade que é eliminada pelos pulmões devido à combinação de fatores fisiológicos e decaimento radioativo. No caso do equilíbrio do ^{222}Rn com seus produtos de decaimento, a energia total de dissipação nos pulmões é 500 vezes maior que a derivada apenas do ^{222}Rn . No caso do ^{220}Rn e seus produtos de decaimento, a dose para os pulmões é menor que a dose recebida por meio do ^{222}Rn e seus produtos de decaimento (EISENBUD e GESSELL, 1997).

A dose depositada em tecidos moles no corpo humano pelo ^{222}Rn e seus produtos de decaimento, quando o primeiro é inalado, é estimada pela NCRP(1987a) em $7 \mu\text{Sv}$ por ano de 30 Bq/m^3 (EISENBUD e GESSELL, 1997).

O ^{222}Rn dissolvido em água potável é outra fonte de exposição humana, principalmente porque o ^{222}Rn é liberado da solução na torneira e entra na atmosfera da residência (EISENBUD e GESSELL, 1997).

Na região de Aldama, no estado de Chihuahua (México), Sujo *et. al* (2004) mediram as concentrações de ^{222}Rn nas águas potáveis. Para isso, utilizaram técnicas de cintilação líquida (*liquids cintilation techniques*). Esta região possui uma taxa de mortalidade por câncer de pulmão duas vezes maior que a média nacional do México, relacionada à inalação do gás radônio, devido à existência de mais de 50 depósitos de urânio no estado. Nesta pesquisa, a concentração de atividade média de radônio nas águas foi de $27,3 \text{ kBq/m}^3$ (SUJO *et. al*, 2004), acima da concentração média mundial relatada pela UNSCEAR (2000), de 10 kBq/m^3 .

2.3 DOSE

Uma das grandezas básicas usada para quantificar a interação da radiação com a matéria é a dose absorvida, definida como a energia transferida para uma quantidade de material. Ou seja, dose absorvida é a energia depositada por unidade de massa do material. Sua unidade é dada em joule por quilograma (J/kg), que corresponde ao gray (Gy) (UNSCEAR, 1993).

A maior parte das exposições à radiação está correlacionada a doses absorvidas no corpo humano. A resposta das células a uma determinada dose absorvida varia de acordo com o tipo de radiação e o tipo de célula irradiada. Sendo assim, a sensibilidade das células à radiação é variável (UNSCEAR, 1993).

Para uma mesma dose absorvida, radiações densamente ionizantes, como as partículas alfa, são mais efetivas, causando mais efeitos que as radiações esparsamente ionizantes. A dose equivalente no tecido humano ou no órgão é a dose absorvida ponderada para um fator de peso (Q) que varia de uma unidade para radiações esparsamente ionizantes, até 20 para partículas alfa (UNSCEAR, 1993). A Tabela 6 relaciona o tipo de radiação com o fator Q.

Tabela 6- Fator de Peso para os diferentes tipos de radiação

Tipo de Radiação	Q
Radiação Gama	1
Raios X	1
Raios Beta e elétrons de energia > 0,03 MeV	1
Raios Beta e elétrons de energia < 0,03 MeV	1,7
Partículas Alfa	20

Fonte: modificada de Cember (1983)

Os órgãos e tecidos do corpo se diferem quanto a sua resposta à exposição às radiações. Considerando este fato, outra grandeza, a dose efetiva, se fez necessária. A dose equivalente em cada tecido é multiplicada pelo fator de peso do tecido e a soma destes produtos no corpo inteiro é chamada dose efetiva. A dose efetiva é um indicador do dano total causado devido aos efeitos estocásticos da exposição (UNSCEAR, 1993). A Equação 22 mostra a relação entre dose efetiva H (Sv), fator de peso da radiação Q, fator de peso do tipo de tecido N e dose absorvida D (Gy).

$$H = D.Q.N \quad (22)$$

2.3.1 Aspectos radiológicos das águas

A qualidade das águas ingeridas é tema de preocupação da Organização Mundial de Saúde (*World Health Organization* – WHO). Entre os itens considerados importantes para a determinação da qualidade da água estão os aspectos radiológicos relacionados. Apesar destes apresentarem riscos menores quando comparados com os aspectos microbiológicos e químicos, vários compostos radioativos encontrados no meio ambiente podem estar presentes nas águas potáveis e, em algumas condições, o risco associado aumenta. A contribuição da água potável para a exposição total é tipicamente pequena, mas sua maior porção está relacionada com os radionuclídeos presentes nas cadeias de decaimento do urânio e tório (WHO, 2011).

Os radionuclídeos presentes nas águas podem ter origem em fontes naturais ou artificiais. Os radionuclídeos naturais presentes nas águas podem ser o ^{40}K , e também os derivados das cadeias de decaimento do tório e do urânio como ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{234}U , ^{238}U e ^{210}Pb . Estes podem ser encontrados devido aos processos naturais de decaimento (ex. adsorção do solo) ou a processos tecnológicos envolvendo radionuclídeos naturais (ex. mineração). As fontes artificiais de radionuclídeos nas águas estão relacionadas com radionuclídeos depositados devido a ciclos de combustível nuclear, radionuclídeos não selados produzidos para suprir necessidades das indústrias, radionuclídeos não selados relacionados à medicina que entram em contato com a água e radionuclídeos depositados no meio ambiente no passado por outros processos artificiais (WHO, 2011).

Para estimar a dose depositada pelo ^{226}Ra e seus produtos de decaimento no organismo é necessário conhecer a fração de ^{222}Rn retido pelo tecido no qual o rádio foi depositado, pois a maior parte da dose é proveniente das emissões alfa do radônio. Convencionalmente, é utilizado um fator de um terço para a retenção de radônio. Um fator complicador é a energia depositada *in situ*, determinada por um modelo de deposição no tecido (EISENBUD e GESSELL, 1997).

No Brasil existem alguns decretos de lei e portarias que legislam sobre a qualidade da água consumida pela população. A mais recente é a Portaria N° 2.914, de 12 de dezembro

de 2011, do Ministério da Saúde. Esta portaria dispõe sobre os procedimentos de controle e de vigilância da qualidade da água para consumo humano e seu padrão de potabilidade. Em seu artigo 38, o documento delimita os níveis de triagem para concentração de atividade alfa total e beta total. Estes não devem exceder 0,5 Bq/L e 1 Bq/L, respectivamente. Caso excedam, deve ser realizada análise específica para os radionuclídeos presentes. Esta portaria especifica a concentração de atividade máxima para ^{226}Ra em 1Bq/L, porém, em seu artigo 2º, ela afirma que as disposições nela presentes não se aplicam à água mineral destinada a consumo humano após o envasamento (BRASIL, 2011).

A Resolução da Diretoria Colegiada da ANVISA, RDC N° 173 de 13 de setembro de 2006 dispõe sobre o Regulamento Técnico de Boas Práticas para industrialização e Comercialização de Água Mineral Natural e a Lista de Verificação das Boas Práticas para Industrialização e Comercialização de Água Mineral e de Água Natural. Esta resolução não cita a radioatividade na água, mas usa como referência o Decreto-Lei n° 7.841 de 8 de agosto de 1945 intitulado “Código de Águas Minerais” (BRASIL, 2006). Neste decreto de lei, o Ministério de Minas Energia determina que as águas minerais devem ser classificadas em: fracamente radioativas, radioativas e fortemente radioativas, de acordo com a presença de radônio na fonte. Os limites usados na classificação são apresentados na Tabela 7 (BRASIL, 1945). É importante salientar que esta classificação dispõe somente sobre a presença de radônio na fonte e não sobre outros radionuclídeos.

Tabela 7 - Limites de atividade de radônio presente na fonte - esta atividade deve ser medida a 20° C e 760 mm de Hg

Classificação da Água	Atividade de Radônio na Fonte	
	Maches	Bq/L
Fracamente Radioativa	5 a 10	67,27 a 134,54
Radioativa	10 a 50	134,54 a 672,72
Fortemente Radioativa	Maior que 50	Maior que 672,72

Fonte: Brasil (1945)

Como na legislação brasileira não foi encontrado um valor de referência para atividade de ^{226}Ra , este trabalho utiliza os níveis de orientação estabelecidos pela WHO (2011). Este relatório determina níveis de orientação para a investigação dos radionuclídeos, utilizando um critério de dose individual (IDC) de 0,1 mSv/ano. Para isso, em sua publicação é sugerida a investigação primária da atividade alfa e beta total nas águas, as quais não devem

exceder 0,5 Bq/L e 1Bq/L, respectivamente. Após esta investigação, as águas que excederam estes limites devem ser examinadas para verificar quais radionuclídeos estão presentes.

A WHO (2011) estabelece o chamado nível de orientação (GL) que é considerado como a concentração de atividade para a presença de um dado radionuclídeo na água consumida durante um ano, resultando em uma dose individual de 0,1 mSv. O GL é dado pela Equação 23, na qual IDC é o critério de dose individual que corresponde a 0,1 mSv/ano, h_{ing} é o coeficiente de dose para ingestão por adultos (mSv/Bq) e q é a ingestão anual de água estimada pela WHO (2011) em 730 L/ano.

$$GL = \frac{IDC}{h_{ing} \cdot q} \quad (23)$$

Para o ^{226}Ra , o coeficiente de dose para ingestão é de $2,8 \cdot 10^{-4}$ mSv/Bq e o GL calculado é 0,5 Bq/L. O nível de orientação foi arredondado, utilizando-se uma escala logarítmica, e assim estabelecido para este radionuclídeo como 1Bq/L, por meio do critério de se atribuir 10^n para o valor calculado entre $3 \cdot 10^n$ e $3 \cdot 10^{n-1}$ (WHO, 2011).

2.4 EFEITOS BIOLÓGICOS DA RADIAÇÃO

O gás radônio é considerado a fonte de radiação ionizante mais importante entre as fontes naturais. Quando o gás radônio é inalado, partículas alfa, consideradas densamente ionizantes, são emitidas também pelos seus produtos de decaimento ^{218}Po e ^{214}Po . Estas partículas podem interagir com os tecidos biológicos nos pulmões, acarretando em danos ao DNA. O câncer é geralmente associado a pelo menos uma mutação e a proliferação desta, formando células que possuem algum nível de danos ao DNA (WHO, 2009).

O processo de ionização modifica átomos e moléculas. Quando este processo ocorre nas células, o dano causado pode ser reparado. Se este dano não for corretamente reparado, ele pode impedir a célula de se reproduzir ou dar origem a uma célula viável, porém modificada. Estas duas situações podem levar a diferentes implicações danosas para o organismo como um todo (UNSCEAR,1993).

O percurso (*track*) da radiação consiste em uma série de eventos separados, cada um envolvendo uma deposição localizada de energia. Se a deposição de energia acontece próxima

ao DNA, e é grande o suficiente, pode provocar danos moleculares às bases do DNA ou ao suporte açúcar-fosfato. A natureza e a probabilidade do dano biológico causado por esse dano ao DNA dependem da densidade de energia depositada ao longo do percurso (*track*) que intercepta o DNA e também da relação entre o dano causado e as enzimas de reparo na célula (UNSCEAR,1993).

Para radiações esparsamente ionizantes, como os raios X, o efeito deste processo é que a relação dose-efeito, para a maioria dos efeitos estocásticos, é curvilínea. Radiações densamente ionizantes, como o a partícula alfa, são mais eficazes na produção dos efeitos estocásticos, e a relação dose-efeito é mais propensa a ser linear (UNSCEAR, 1993).

O DNA, material genético das células, é o principal alvo para a ação da radiação. A modificação do mesmo pode ser causada por alteração na sequência dos pares de bases, perda ou adição destas, alterando assim a função genética. Estas alterações são chamadas mutações (UNSCEAR, 1993).

A perda de poucas células pode não afetar a função da maioria dos órgãos. Entretanto, se o número de células perdidas no processo for grande o suficiente e o tipo de célula for importante, o dano será observado. Este dano é reflexo da perda de células, gerando perda de função do tecido. Para pequenas doses, a probabilidade de causar perda de função do tecido é próxima de zero, mas acima de um determinado limiar de dose a probabilidade aumenta drasticamente para um valor próximo a 100%. Acima deste limiar, a severidade do dano aumenta com o aumento da dose. Este tipo de efeito é considerado determinístico (UNSCEAR, 1993).

A situação é diferente se ao invés de mortas, as células irradiadas são modificadas. Neste caso, pode ser possível reproduzir a célula modificada. No organismo humano existe uma série de mecanismos de defesa altamente eficientes, mas que não são totalmente efetivos o tempo todo. Desta forma, as células provenientes da célula viável modificada podem se reproduzir e após um tempo prolongado e variável, chamado período de latência, podem causar uma condição maligna, o câncer. A probabilidade, mas não necessariamente a severidade do câncer, aumenta com o aumento da dose. Este tipo de efeito é considerado estocástico (UNSCEAR, 1993).

Outro tipo de efeito que pode ser causado pela irradiação é o efeito hereditário. O mesmo ocorre quando a célula afetada é responsável pela transmissão das informações genéticas para as próximas gerações (UNSCEAR, 1993).

A inalação do ^{222}Rn e ^{220}Rn e seus produtos de decaimento, com subsequente deposição nas paredes das vias aéreas ou árvore brônquica, é a principal forma de exposição dos pulmões à radiação. Esta exposição acontece, principalmente, pelas partículas alfa produzidas, mas também por partículas beta e radiação gama que também são emitidas no processo. Isso se explica pelo fato de que as partículas alfa emitidas nas paredes das vias aéreas têm um pequeno alcance, da ordem de dezenas de micrômetros e há grande variação de densidade de ionização e excitação ao longo, e próximo, do caminho da partícula (UNSCEAR, 2000).

Se for considerado que uma única partícula alfa pode causar grande dano genético às células, os danos ao DNA relacionados ao radônio podem ocorrer em qualquer nível de exposição. Portanto, é improvável que exista uma concentração limiar de radônio abaixo da qual não exista risco potencial de causar câncer de pulmão (WHO, 2009).

Desta forma, observa-se o espectro importante de aspectos que envolvam radiações, suas fontes e seus efeitos. O capítulo a seguir mostra as técnicas utilizadas baseadas no referencial teórico apresentado, que propiciaram o desenvolvimento da tese.

3 METODOLOGIA

3.1 CLASSIFICAÇÃO E DELIMITAÇÃO DA PESQUISA

Os objetos principais da pesquisa compreendem o gás radônio e seu precursor, o rádio. Estes elementos são mensurados por meio de sua concentração de atividade em águas minerais brasileiras engarrafadas, por meio de técnicas e equipamentos específicos.

A interdisciplinaridade está presente nesta pesquisa, visto que, a mesma utiliza conhecimentos relacionados à física e à ambiental, dentre outras. A física está presente por meio dos conceitos de radioatividade, equilíbrio secular, decaimentos radioativos e também nos princípios de funcionamento dos detectores de radiação utilizados.

A presente pesquisa, quanto ao nível de interpretação, tem caráter comprobatório. Assim, pretende-se comprovar uma hipótese: o rádio sendo um elemento radioativo natural pode estar presente em quantidades significativas nas águas minerais brasileiras. A forma de abordagem desta pesquisa é quantitativa, pois utiliza dados numéricos para analisar a situação das águas e classificá-las de acordo com normas e recomendações brasileiras.

A fundamentação teórica foi realizada por meio de normas nacionais e internacionais, trabalhos acadêmicos e publicações científicas relacionados com o tema. Os experimentos realizados utilizaram águas minerais engarrafadas de vários estados brasileiros: Rio Grande do Sul, Santa Catarina, Paraná, São Paulo, Espírito Santo, Minas Gerais e Mato Grosso.

3.2 EQUIPAMENTO: DURRIDGE RAD7

O equipamento RAD7 é um instrumento versátil, que pode ser considerado como base de um sistema de medida específico para radônio. Existem diversos métodos já desenvolvidos para medidas de radônio em água, dos quais pode-se citar: Espectroscopia Gama (GS), Célula de Lucas (LC) e Cintilação Líquida (LS), que são descritos a seguir, a partir de informações contidas no manual do equipamento RAD7 (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009a).

A Espectroscopia Gama visa detectar fótons de radiação gama liberados pelos produtos de decaimento do radônio em um recipiente fechado contendo água. Apesar de ter um conceito simples, este método não possui a sensibilidade para detectar o radônio em baixas concentrações de atividade, o que é considerado importante.

A Célula de Lucas tem sido utilizada por décadas para análises laboratoriais de ^{222}Rn e ^{226}Ra (pela emissão do radônio). Este método necessita de trabalho intensivo por usar um sistema complexo de vidrarias e uma bomba de vácuo para retirar o ar da Célula de Lucas (cintilação). O ar é borbulhado através da amostra de água até preencher a célula. Este método pode medir concentrações de atividade relativamente baixas com acurácia e reprodutibilidade, porém para isso é necessário que seja o procedimento utilizado seja cuidadoso e exige bastante experiência.

O método de Cintilação Líquida foi inicialmente utilizado nos anos de 1970. Um mistura de cintilador líquido é adicionado à amostra em um frasco de 25mL, o que faz com que o radônio saia da água. Quando o gás decai, as partículas alfa cintilam. Este método utiliza contadores padrão de cintilação líquida, os quais são altamente automatizados e podem contar centenas de amostras em sequência sem intervenção. A EPA determinou que este método é tão acurado e sensível quanto o método da Célula de Lucas, não necessita um trabalho intensivo e tem menor custo.

Em comparação com os métodos citados anteriormente, o RAD H₂O oferece um método tão acurado quanto o método de Cintilação Líquida, além de ser mais rápido para uma primeira leitura, portátil, não necessitar de trabalhos tão intensos e ter relativamente menor custo. O uso do equipamento RAD7 também elimina a necessidade do uso de produtos tóxicos.

O equipamento DurrIDGE RAD7 utiliza um detector de estado sólido em sua forma de operação para detectar partículas alfa. Este detector é um material semiconductor que converte a radiação alfa diretamente em um sinal elétrico, possuindo a vantagem de determinar eletronicamente a energia de cada partícula alfa detectada. Este equipamento consegue determinar qual isótopo (^{218}Po , ^{214}Po , etc.) produziu a radiação. Desta forma, é possível distinguir o radônio antigo do recente, o ^{222}Rn do ^{220}Rn , e o sinal produzido pelo ruído. Esta técnica é conhecida como espectrometria alfa.

A célula interna de amostragem do equipamento RAD7 é um hemisfério de 0,7 litros, revestido internamente por um condutor elétrico. Um detector alfa de estado sólido (*Ion-implanted, Planar, Silicon*) se situa no centro do hemisfério. Um circuito de alta tensão

carrega o interior do condutor com uma tensão de 2000 a 2500 volts, o que cria um campo elétrico em todo o volume da célula. O campo elétrico impulsiona as partículas carregadas positivamente em direção ao detector. A Figura 2 mostra um esquema ilustrado do equipamento RAD7 / H₂O *kit*, preparado para as medidas de concentração de atividade de radônio em águas para amostras de 40 ou 250 mL (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009b).

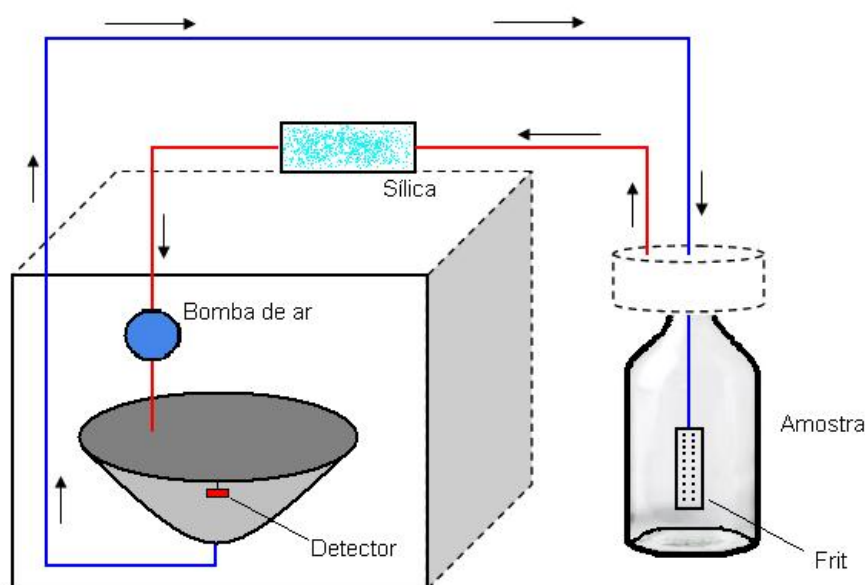


Figura 2 - Esquema de ilustrativo do equipamento RAD7 / H₂O *kit*, preparado para medidas de concentração de atividade de radônio em águas

Fonte: autoria própria

Um núcleo de ^{222}Rn decai dentro da célula e transforma-se em ^{218}Po , como um íon carregado positivamente. O campo elétrico dentro da célula atrai o íon positivo para o detector, que se adere a ele. Quando o núcleo de ^{218}Po com meia-vida curta decai na parede do detector, sua partícula alfa possui 50% de probabilidade de entrar no detector e produzir o sinal elétrico proporcional à energia da partícula alfa. O decaimento deste núcleo produz partículas beta, as quais não são detectadas, ou partículas alfa com energias diferentes. Isótopos diferentes liberam partículas alfa de energias diferentes que produzem sinais diferentes no detector.

O espectro obtido com o uso do equipamento RAD7, mostrado na Figura 3, é uma escala de energia das partículas alfa de 0 a 10 MeV. Existe um interesse particular na energia

das partículas alfa produzidas pelos filhos do radônio e torônio que estão entre 6 e 9 MeV. Neste espectro, cpm representa o número de contagens por minuto. Os picos encontrados para as faixas de energias representadas pelas letras A e C, representam o número de contagens devido ao decaimento do ^{218}Po e do ^{214}Po , respectivamente. Ambos são produtos do decaimento do ^{222}Rn , sendo o ‘pico A’ relacionado ao ^{222}Rn recente e o ‘pico C’ ao ^{222}Rn antigo, levando em consideração que o ^{214}Po é o produto de decaimento do ^{218}Po . De forma semelhante, os ‘picos B e D’ representam o número de contagens devido ao decaimento do ^{216}Po e do ^{212}Po , sendo estes isótopos produtos do decaimento do ^{220}Rn , conhecido como torônio (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009a).

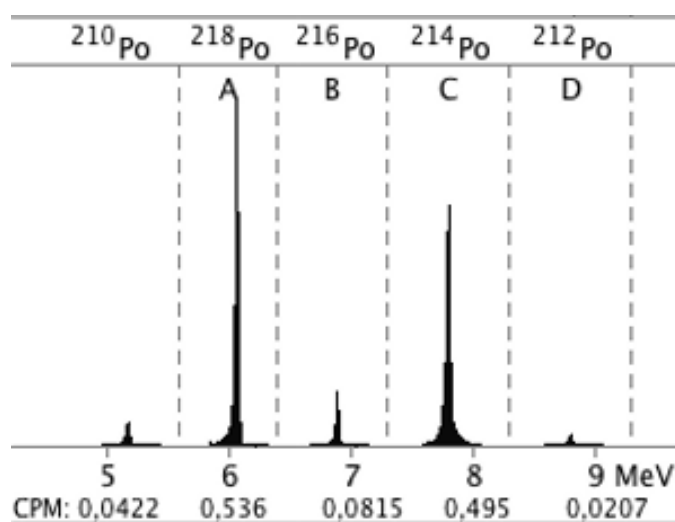


Figura 3 - Espectro de energias mostrado pelo equipamento que permite distinguir o radônio recente do antigo (A e C, respectivamente), radônio do torônio e o sinal produzido por ruído

Fonte: adaptado de Durrige Company Inc, (2009a)

O ^{219}Rn , chamado de actinônio, faz parte da cadeia de decaimento do ^{235}U . O ^{220}Rn , ou torônio, é parte da cadeia de decaimento do ^{232}Th . E o ^{222}Rn , conhecido simplesmente como radônio, é parte da cadeia de decaimento do ^{238}U . Todas as partículas alfa emitidas por diferentes núcleos possuem energias diferentes, o que permite diferenciá-las. Por exemplo, o pico na região A da Figura 3 corresponde às partículas alfa emitidas pelo ^{218}Po , enquanto o pico na região C corresponde às partículas alfa emitidas pelo ^{214}Po .

A utilização do método de espectrometria alfa, juntamente com o detector de alta resolução de energia, permite exatidão ao equipamento RAD7. Porém, a incapacidade de aumentar significativamente a área do detector de alta resolução de energia impõe restrições à sensibilidade do equipamento. De acordo com Durrige Company Inc. (2009a), o nível

inferior da concentração de atividade que o equipamento RAD7 é capaz de registrar pode ser menor que 0,37 Bq/L, mas isto depende da técnica a ser utilizada.

Neste trabalho, para as medidas de concentração de atividade do gás radônio nas amostras, foi utilizado um *kit* específico para o equipamento RAD7, chamado H₂O *kit* (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009b). O mesmo possui um conjunto de frascos de 40 mL e 250 mL, aerador, tubo de dessecante e mangueiras para as conexões. A metodologia para as medidas no desenvolvimento desta pesquisa será descrita nos itens a seguir.

Após a realização das medidas, os resultados obtidos nos experimentos são transferidos para um computador. Para esta transferência e visualização dos dados no computador é necessário um *software* denominado CAPTURE. Este *software* permite a visualização das medidas ao longo do tempo, e permite também verificar a umidade. Fornece, inclusive, resultados corrigidos para temperatura e umidade, média e desvio padrão. A Figura 4 mostra a janela padrão para a visualização dos resultados no CAPTURE (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009a). Nesta figura, a coluna no lado esquerdo permite selecionar as informações a serem mostradas no gráfico que se encontra na parte central da tela. A coluna do lado direito mostra o espectro de energias das partículas alfa detectadas e também os resultados das médias e erros associados às medidas. O gráfico mostrado na parte central da tela mostra as concentrações de atividade em função do tempo de medida, os erros em barras azuis e uma faixa cinza central que mostra a média da concentração de atividade e o erro associado.

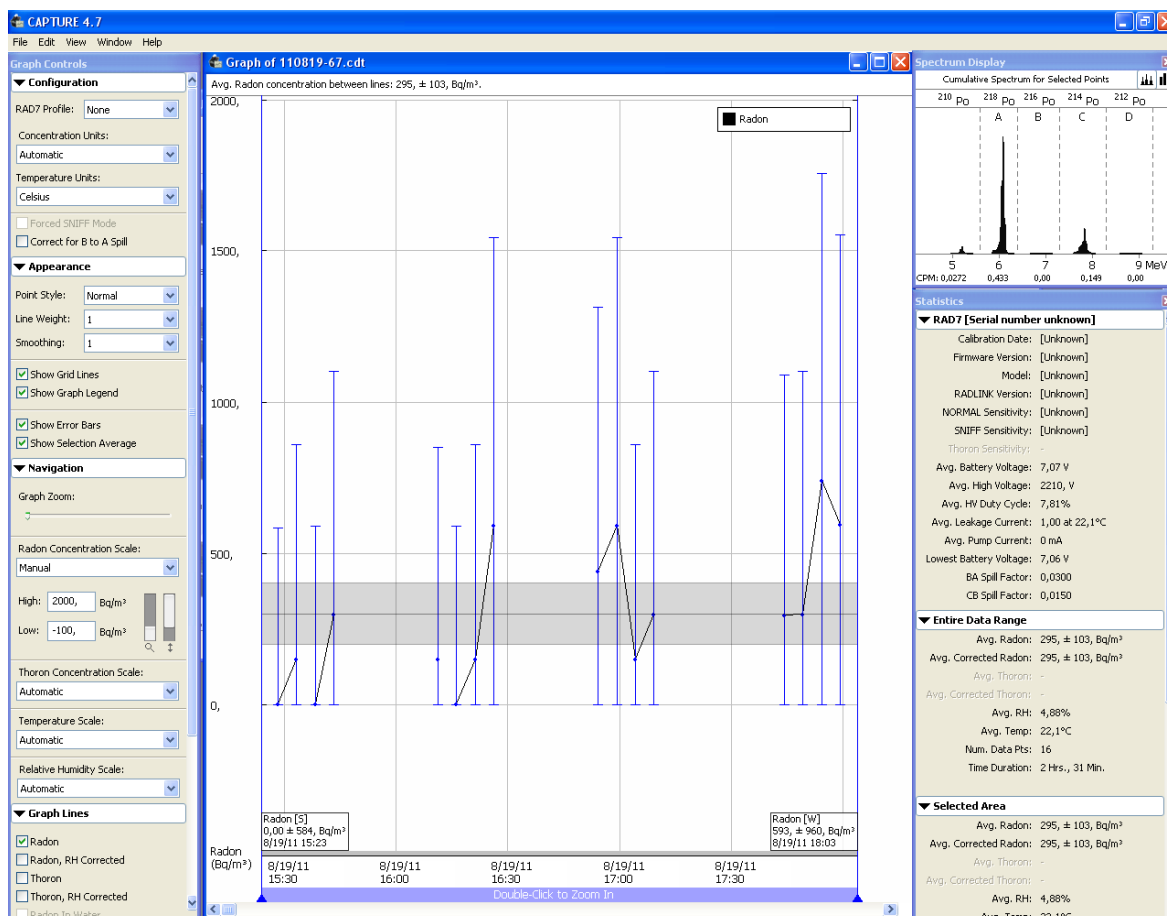


Figura 4 - Janela padrão para a visualização de resultados no Capture v4.7

Fonte: autoria própria

3.3 CARACTERIZAÇÃO E PREPARO DAS AMOSTRAS

No presente trabalho foram analisadas vinte e sete amostras de águas minerais engarrafadas compradas nos mercados brasileiros. Destas, nove possuem sua fonte localizada no Paraná, seis em São Paulo, cinco em Santa Catarina, três no Espírito Santo, duas em Minas Gerais, uma no Mato Grosso e uma no Rio Grande do Sul.

Das vinte e sete amostras analisadas, apenas sete possuem indicação da radioatividade na fonte. De acordo com o Código Nacional de Águas (1945), duas delas podem ser classificadas como fracamente radioativas, quatro como radioativas e uma como fortemente radioativa. A radioatividade destas águas é medida na unidade mache e se refere à concentração de radônio na fonte. Os valores apresentados estão entre 6,9 mache e 53,3

mache. Observa-se que mache é a unidade de medida da concentração de radônio na fonte, 1 mache equivale à 12,8 Bq/L.

As amostras foram armazenadas em garrafas hermeticamente fechadas por no mínimo 30 dias para que ocorresse o decaimento do radônio já existente na amostra, medindo-se assim apenas o radônio suportado (advindo do rádio).

Isto se explica pelo fato de que o ^{222}Rn é gerado naturalmente pelo decaimento do ^{226}Ra . Como o ^{226}Ra possui um tempo de meia-vida (1600 anos) muito maior que o tempo de meia-vida do ^{222}Rn (3,82 dias), estes dois radionuclídeos entram em equilíbrio secular com o passar do tempo. Em uma amostra armazenada por 30 dias, restam apenas ~0,4% do ^{222}Rn existente na água no momento do armazenamento. Então, ~99,6% do ^{222}Rn encontrado na amostra após os 30 dias é proveniente do decaimento do ^{226}Ra contido na amostra (estes valores foram calculados de acordo com a Equação 21). Desta forma, após este tempo, pode-se considerar que a concentração de ^{226}Ra e ^{222}Rn é a mesma devido ao equilíbrio secular.

O equilíbrio secular possibilita medidas de rádio por inferência. Embora o objeto de medida seja o rádio, é o radônio que é medido na prática. Assim, após os 30 dias, as amostras puderam ser analisadas. Para medir a concentração de atividade nas amostras de águas minerais foi utilizado o equipamento DurrIDGE RAD7, já descrito no item anterior.

3.4 METODOLOGIA PARA MEDIDAS DE RADÔNIO SUGERIDA PELO MANUAL DO EQUIPAMENTO RAD7 (DURRIDGE COMPANY) H₂O KIT

De acordo com as informações contidas no manual do H₂O RAD7 (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009b), antes de fazer uma medida a partir do equipamento, as vias do mesmo devem estar livres de radônio e secas. Para isto, o manual sugere que o sistema deve ser purgado por meio de um dissecante durante 10 minutos, em circuito aberto, para que o ar contido no sistema seja trocado pelo ar externo. Após este procedimento, o circuito de mangueiras deve ser fechado e o processo de purgar deve continuar até que a umidade do sistema esteja a mais baixa possível. O manual sugere 5% como valor ótimo, visto que durante o processo de medição a umidade não deve ultrapassar 10%.

A Figura 5 mostra o equipamento RAD7 preparado para iniciar uma medida de água, com auxílio do H₂O *kit*. O manual sugere que para as medidas de ^{222}Rn em água, seja escolhido o protocolo WAT250 ou o WAT-40 do equipamento. Ambos consistem de uma

etapa de aeração da amostra que acontece durante cinco minutos (Figura 6); os cinco minutos seguintes são um período de intervalo para que aconteça o equilíbrio entre o ^{218}Po e o ^{222}Rn . Este intervalo é necessário pois o equipamento detecta as partículas alfa de energias próximas à energia da partícula alfa proveniente do ^{218}Po . Desta forma, a partir da concentração de ^{218}Po , é possível determinar a concentração de ^{222}Rn , visto que estes isótopos estão em equilíbrio secular. Após este tempo de aeração, estes protocolos fazem a contagem em 4 ciclos de 5 minutos cada um. Esses dois protocolos diferem apenas pelo volume da amostra (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009b).

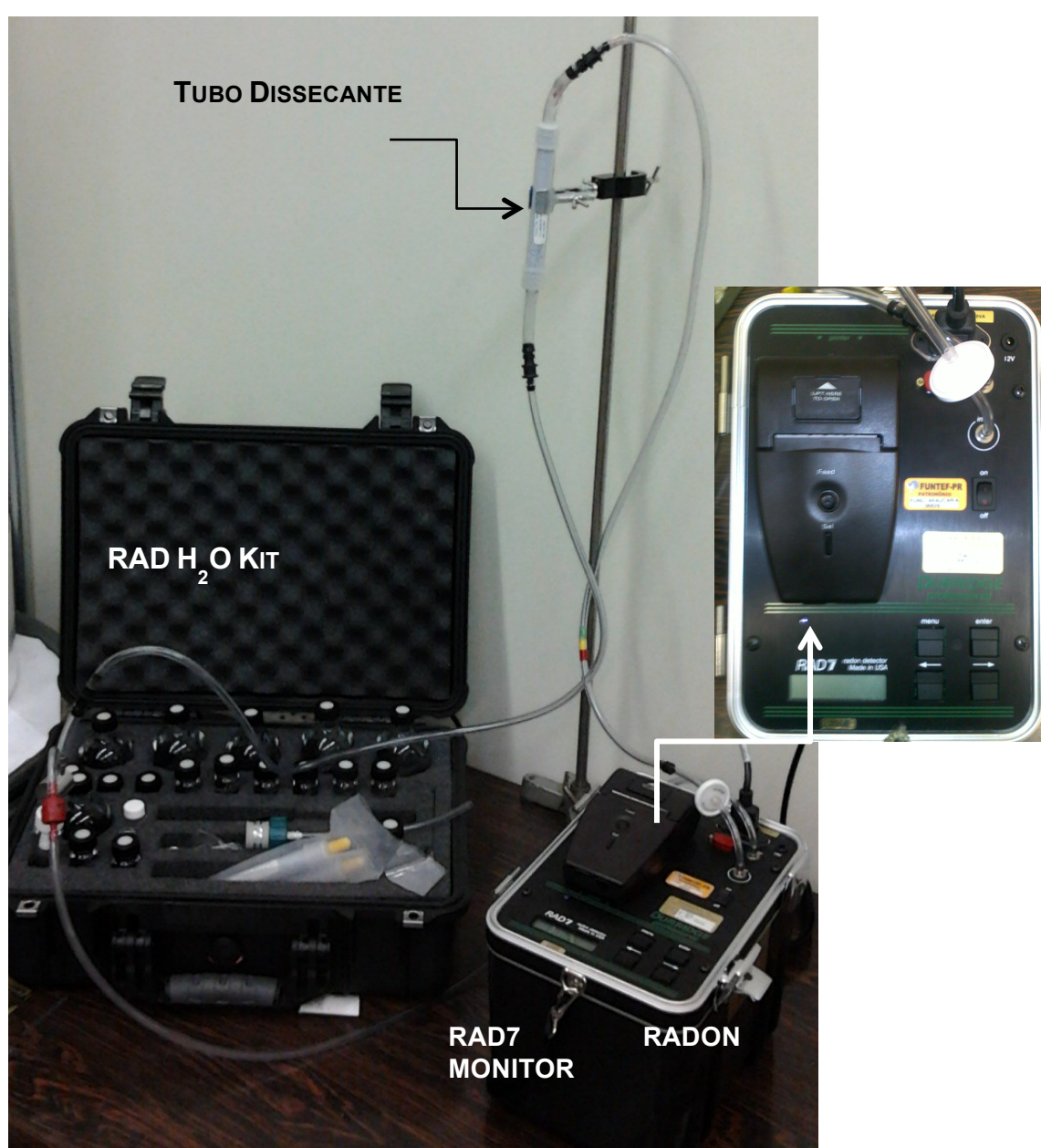


Figura 5- Equipamento RAD7 e H₂O kit montado para a realização das medidas de radônio em amostras de água

Fonte: autoria própria

O Apêndice B mostra um resumo da metodologia aplicada para medidas de radônio de acordo com os manuais do equipamento e do H₂O *Kit* utilizados.



Figura 6- Aeração de uma amostra de 40mL
Fonte: autoria própria

3.5 TESTES PARA O DESENVOLVIMENTO DA NOVA METODOLOGIA

A metodologia sugerida pelo manual do equipamento RAD7 H₂O *kit* não se mostrou adequada devido a problemas relacionados aos erros que possuem a mesma ordem de grandeza que o tamanho da medida, quando se utiliza este protocolo. Estes problemas serão mostrados posteriormente na Tabela 8 no item 4.1. Para melhorar os resultados, percebeu-se a necessidade de diminuir o erro das medidas e mensurar e diminuir o *background* do sistema.

No desenvolvimento da nova metodologia foram testados os fatores que poderiam estar influenciando o resultado das medidas, como o *background*. Também foram feitos testes para aumentar o tempo de medida e verificar como a umidade dentro do sistema se comportaria frente a esse aumento. Para isto, realizou-se testes em separado para a verificação

do *background* e da umidade durante o procedimento de medida. Diferentes medidas de água destilada foram feitas, utilizando o protocolo WAT250 sugerido no manual. Com isso, observou-se uma variação importante nas medidas, levando à compreensão de que o *background* do sistema fica suscetível às mudanças nas conexões das mangueiras. Percebeu-se, assim, a necessidade de mudanças também nas conexões.

3.5.1 Redução e verificação do *background*

O manual sugere que o sistema seja limpo com circulação de ar externo pelas mangueiras do sistema. Desta forma, foi realizada a medida do *background* com o sistema aberto. Para esta medida, foram utilizados protocolos com contagens em 15, 10, 5 e 3 ciclos de 5 minutos cada um.

Foi realizada também uma medida de *background* com o uso de carvão ativado no sistema aberto, considerando que o manual sugere o uso do carvão ativado para a redução do *background*. Para estas medidas, foram utilizados protocolos de 6 e 8 ciclos de 5 minutos cada um.

Para testar a eficiência do procedimento nas medidas de amostras de água, foi realizada uma medida do *background* em sistema fechado com posterior adaptação da amostra de água destilada no circuito. Para este teste, foi utilizado um protocolo de 4 ciclos de 5 minutos cada um para o *background* e 8 ou 6 ciclos de 5 minutos para a amostra de água destilada.

3.5.2 Testes para o aumento do tempo de medida

Outra questão importante quando se mede amostras com pequena concentração de atividade, é o erro associado. Para diminuir o erro das medidas foi ampliado o tempo de cada medida. O protocolo WAT250, sugerido pelo fabricante do equipamento, utiliza 4 ciclos de 5 minutos cada um. Com o objetivo de diminuir o erro das medidas, três outros protocolos foram testados com o aumento do tempo da medida: (a) 4 ciclos de 1 hora e 30 minutos, cada

um usando o secador pequeno; (b) 6 ciclos de 1 hora usando o secador grande; e (c) 24 ciclos de 15 minutos utilizando o secador pequeno.

3.6 METODOLOGIA OTIMIZADA PARA AS MEDIDAS DE ^{226}Ra EM ÁGUAS MINERAIS

Houve análise, em separado, de todas as partes do sistema, desde o *background* dos frascos, que poderiam alterar os valores, até do *background* da atmosfera do laboratório. Levando em consideração as dificuldades com o sistema existente (umidade e *background*), foi montado um novo sistema de conexões, que inclui o frasco de carvão ativado e 5 conectores de passagem em cada ponto de interesse, proporcionando assim, condições de realizar os procedimentos de secagem e limpeza, sem deixar que o sistema tenha vazamentos ou entradas. A Figura 7 mostra uma imagem dos conectores já adaptados.

O sistema desenvolvido neste trabalho permite a troca de amostras de água sem a troca gasosa no interior das mangueiras, bem como permite a troca da sílica, quando necessário. Esta adaptação do sistema é uma importante contribuição do presente trabalho. A Figura 8 mostra um esquema do sistema desenvolvido. Neste esquema, os conectores estão numerados de 1 a 5.

Os conectores 1 e 2 fecham a comunicação do sistema com a amostra fazendo com que o ar circule através da seta de cor verde. Os conectores 3 e 4 são fechados para a troca da sílica, isolando o sistema do ambiente neste momento. Os conectores 4 e 5 são utilizados para selecionar o caminho do ar, quando for necessário fazer a limpeza do sistema com carvão ativado; para isso o ar circula pelas mangueiras representadas pelas setas vermelhas na Figura 8.

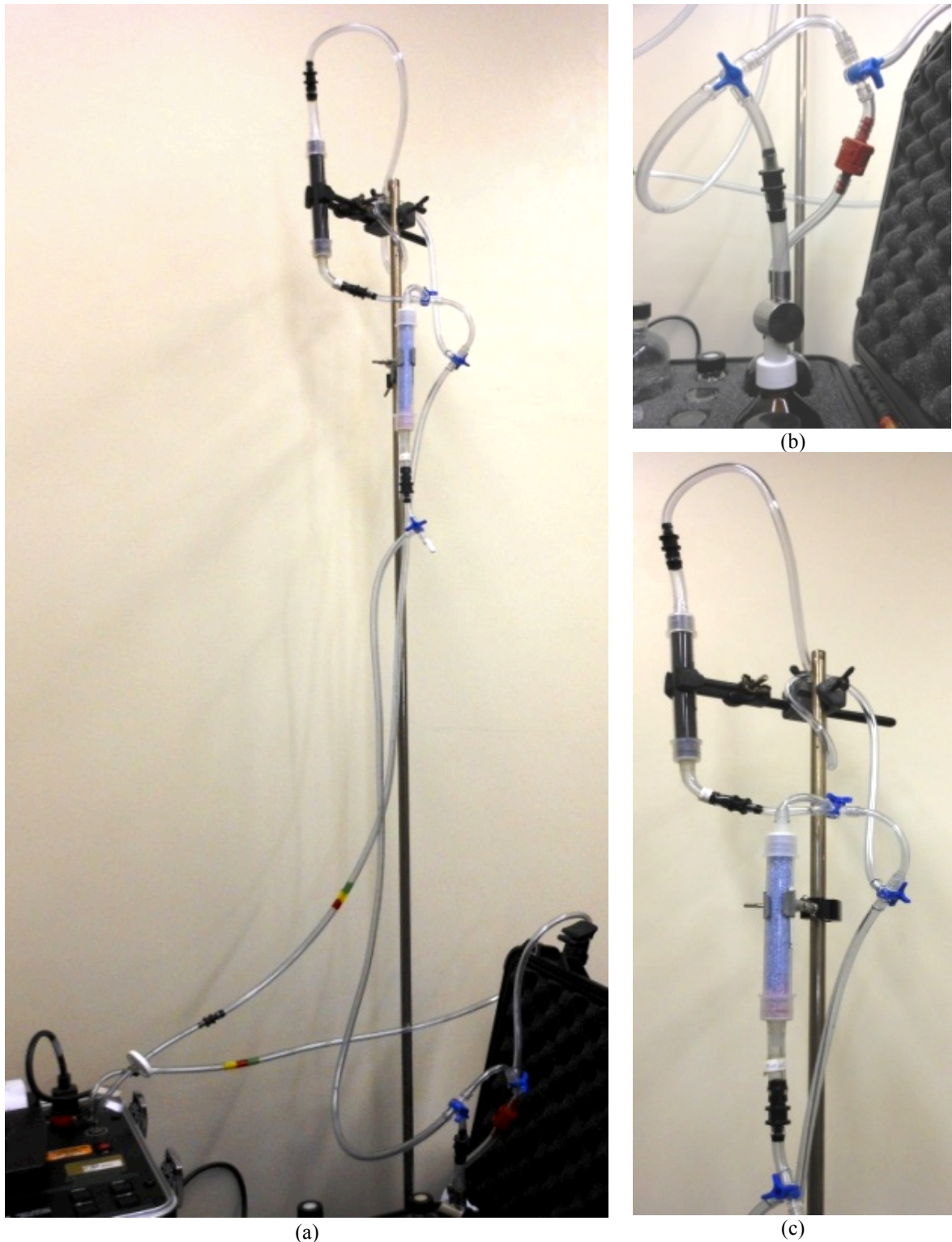


Figura 7 – Fotografia do sistema montado após adaptação: (a) sistema adaptado de forma a permitir a troca da amostra e da sílica mantendo o ar interno do sistema. O sistema permite também o uso do carvão ativado por meio da seleção da via com o uso do conector; (b) detalhe dos conectores que fazem o ar passar pelo carvão ativado para a limpeza do ar dentro do sistema entre as medidas com mínimo contato com o ar externo (c) detalhe do sistema para seleção de uso ou não do carvão ativado

Fonte: autoria própria

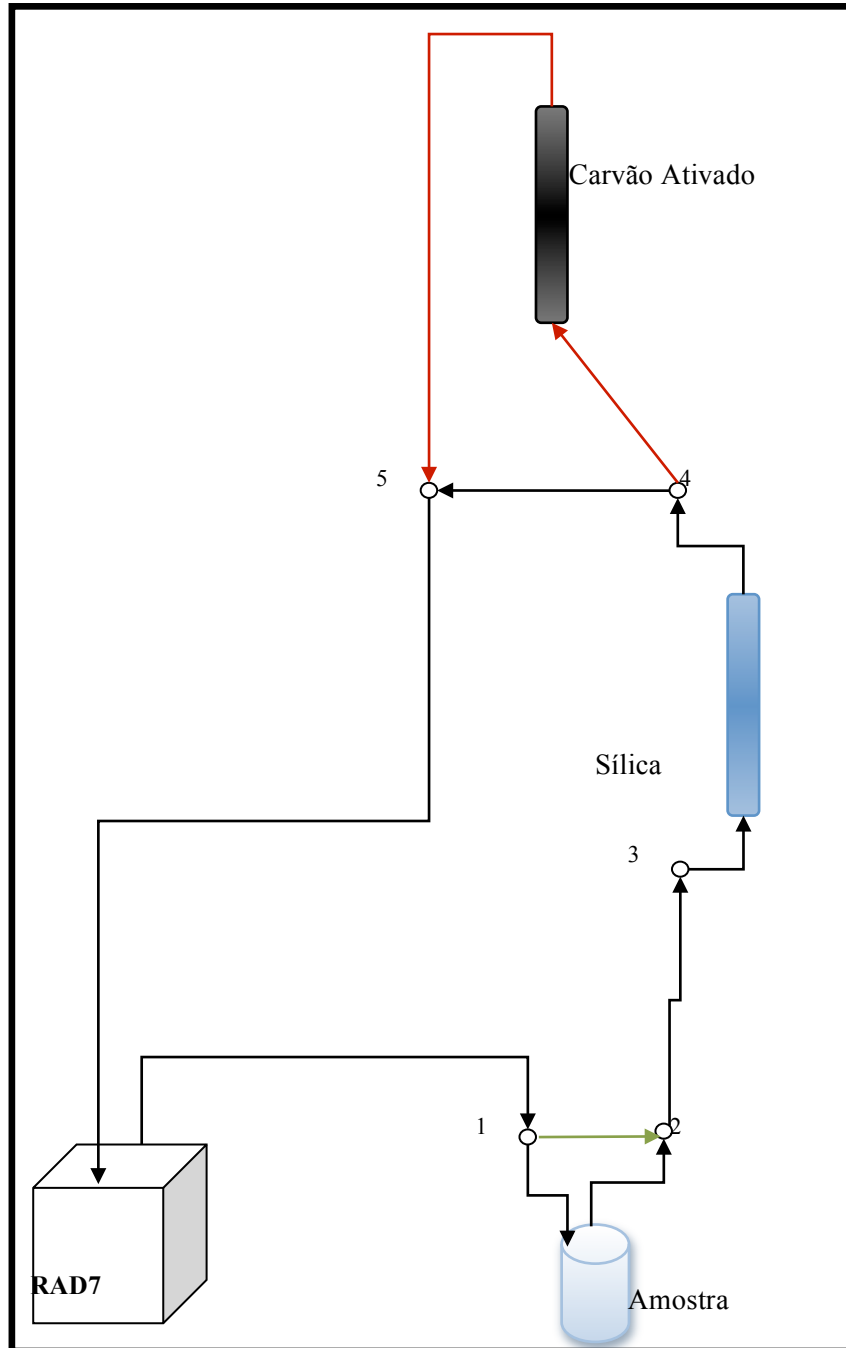


Figura 8- Esquema do sistema desenvolvido no presente trabalho para diminuir e verificar o *background* e diminuir os erros associados as medidas. A escolha das vias de passagem do ar permite a troca da sílica e da amostra sem o contato do ar do sistema com o ar externo

Fonte: autoria própria

Os altos valores dos erros associados às medidas preliminares, explicitados no Capítulo 4 deste trabalho (Tabela 8), levaram ao desenvolvimento de um novo protocolo para

medidas indiretas de rádio, por meio do equilíbrio secular com o radônio, para amostras com baixa concentração de atividade de rádio.

Com o objetivo de controlar e medir o *background* do sistema, manter a umidade baixa e diminuir os erros associados às medidas, foi utilizada a metodologia que incorporou o sistema já descrito de conectores e ainda gerou um procedimento, que é descrito passo-a-passo, a seguir.

Antes e após cada medida, o sistema foi limpo por meio da utilização de carvão ativado e seco e por meio dos secadores que fazem parte do *kit* do equipamento. Para verificar o procedimento, foi realizada uma medida de *background* do ar dentro do sistema antes de iniciar a medida da amostra. O procedimento de limpeza, secagem e verificação do *background* é descrito a seguir:

- Primeiramente, o sistema é limpo para diminuir a quantidade de ^{222}Rn e seus filhos no sistema por meio da circulação de ar no sistema, que inclui o carvão ativado (utilizando a via representada pelas setas vermelhas na Figura 8). Desta forma, o valor associado ao *background* diminui.
- Após este procedimento, o sistema é seco, fazendo o ar circular pelas mangueiras do sistema e pela sílica. Quando a umidade atingiu 5%, iniciou-se a medida do *background*.
- Para a verificação do *background*, é feita uma medida de concentração do ^{222}Rn no ar interno das vias, antes de medir a amostra de água. A medida da concentração de ^{222}Rn no ar, de acordo com a nova metodologia sugerida, é realizada por meio de 4 medidas de 5 minutos cada uma. Durante estas medidas o ar circula pelo interior do sistema, inclusive pela sílica. Desta forma, o ar interno do sistema é seco, ao mesmo tempo em que a medida é realizada, reduzindo assim a umidade no sistema. Tanto para secar quanto para medir o *background*, a via utilizada é representada pela seta de cor verde na Figura 8. Por meio desta via, a amostra pôde ser acoplada ao sistema sem a comunicação do ar presente nas mangueiras, com o ambiente externo ao sistema.

Após a verificação do *background*, a medida de água pôde ser realizada. Esta medida foi realizada por meio do protocolo WAT250 do próprio equipamento. Este protocolo selecionado foi repetido por 4 vezes seguidas, a fim de diminuir os erros associados. Entre as repetições do protocolo WAT250, o sistema foi seco por meio da passagem do ar novamente

pela via verde sem interagir com a água da amostra. Após o procedimento de secagem, a via verde foi fechada e o ar pôde circular novamente pela amostra.

A Figura 9 apresenta um fluxograma com as principais etapas relacionadas à nova metodologia empregada na realização de medidas de rádio em águas minerais, com a utilização do equipamento RAD7.

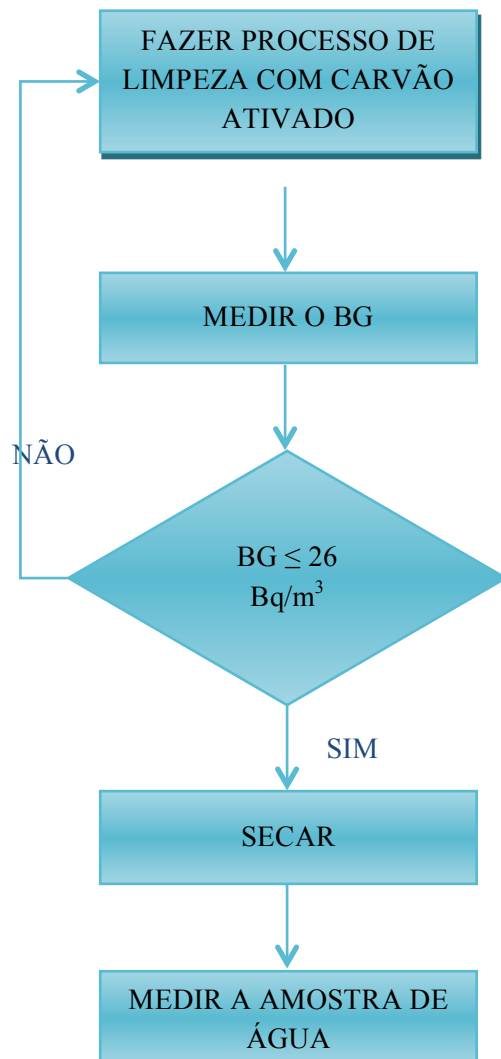


Figura 9 - Fluxograma da metodologia empregada na realização das medidas de rádio em equilíbrio com radônio em águas minerais

Fonte: autoria própria

3.7 ANÁLISE DOS DADOS PARA A TÉCNICA PROPOSTA

Os dados obtidos nos procedimentos descritos anteriormente foram utilizados para o cálculo da concentração de ^{226}Ra em água. Para isso, foram consideradas as medidas de *background* (BG) e as medidas das amostras de água ($M_{\text{água}}$) e os respectivos erros associados.

Para definir o *background* (BG), foram utilizados no cálculo a média obtida no equipamento e o desvio padrão (SD_{BG}), associado para um valor médio do *background* (BG). Para calcular o erro (ER_{BG}) foi utilizada a Equação 24, na qual n é o número de medidas e o valor (1,3) se refere ao valor *t de student* associado ao desvio padrão para 4 medidas.

$$ER_{BG} = \frac{(1,3)(SD_{BG})}{\sqrt{n}} \quad (24)$$

Para a média associada à amostra ($M_{\text{água}}$), foi feita a média das medidas da amostra (AM) e o desvio padrão (SD_{AGUA}). O erro associado a esta amostra (ER_{AM}) foi calculado levando em consideração o desvio padrão como mostra Equação 25.

$$ER_{AM} = \frac{(SD_{AGUA})}{\sqrt{n}} \quad (25)$$

O cálculo da concentração de ^{226}Ra em água (C_{Ra}) foi feito subtraindo o BG da média das medidas de água ($M_{\text{água}}$) conforme mostra a Equação 26.

$$C_{Ra} = M_{\text{água}} - BG \quad (26)$$

O erro total desta concentração ($ER_{C_{Ra}}$) é a raiz quadrada da soma quadrática do erro do BG (ER_{BG}), com o erro da amostra (ER_{AM}), como mostrado na Equação 27.

$$ER_{C_{Ra}} = \sqrt{(ER_{AM}^2 + ER_{BG}^2)} \quad (27)$$

3.8 TESTES DE VARIAÇÃO DO *BACKGROUND* EM FUNÇÃO DO TEMPO DE MEDIDA

A variação do *background* em função do tempo foi verificada por meio de medida realizada com um protocolo de 99 ciclos de 10 minutos, com o ar em circulação no sistema, totalizando 990 minutos de medida. Este procedimento foi realizado para que fosse medida a concentração de atividade de todo o ar dentro do sistema.

Além desta medida, foram realizadas medidas de vários itens do sistema:

- Sistema sem o uso da sílica (Figura 10), com passagem de ar por meio das mangueiras representadas pelas cores verde e azul;
- Menor conexão possível entre a entrada e saída do equipamento com a utilização de um filtro (Figura 11);
- Menor conexão possível entre a entrada e saída do equipamento sem a utilização de um filtro (Figura 12);
- Menor conexão possível entre a entrada e saída do equipamento com a utilização de um filtro completamente colado (Figura 13).

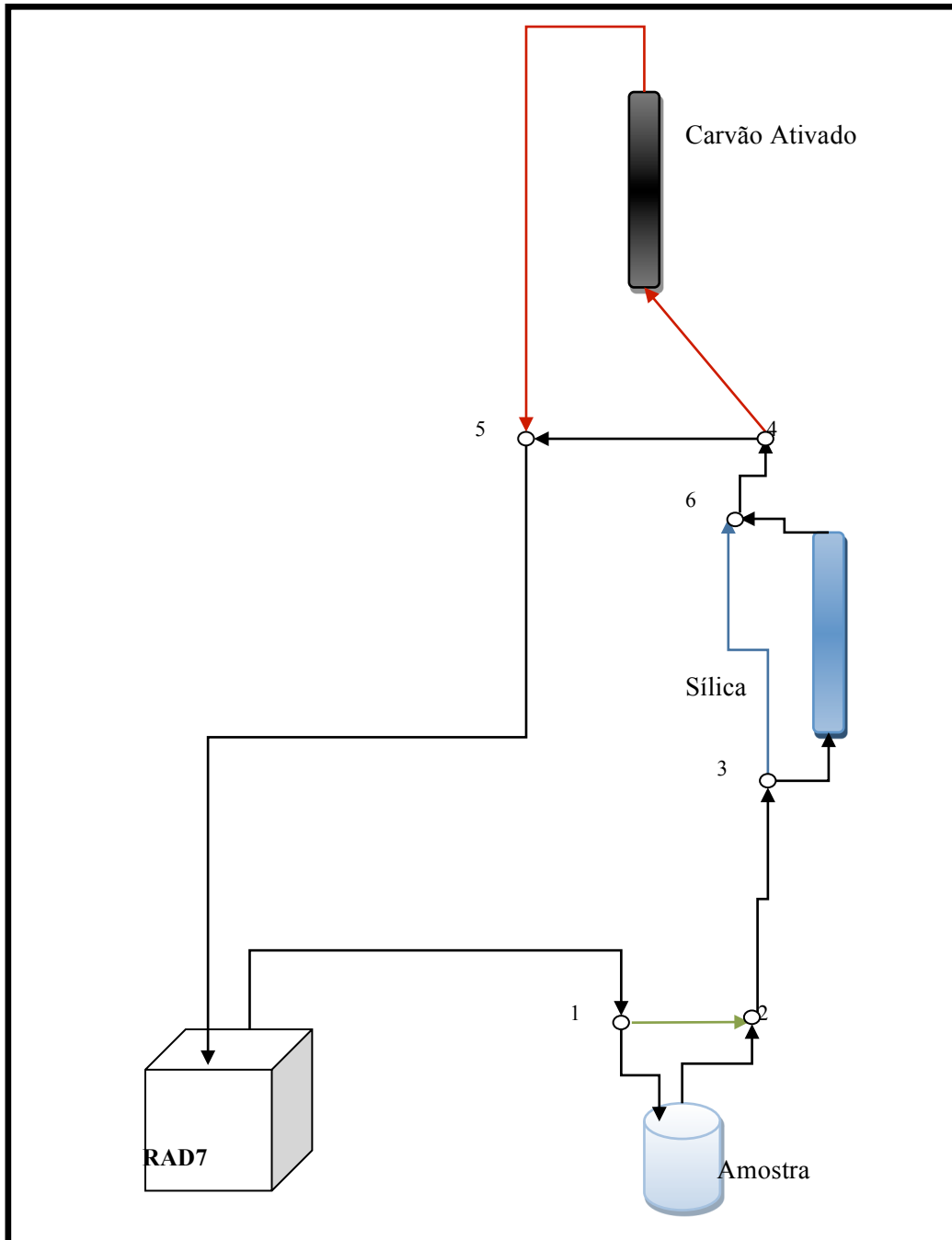


Figura 10 - Esquema do experimento para verificação da sílica - via de cor azul funcionando como *bypass*

Fonte: autoria própria



Figura 11 - Conexão direta entre o *in* e o *out* do equipamento com o filtro para medida de *background* em função do tempo

Fonte: autoria própria



Figura 12 - Conexão direta entre o *in* e o *out* do equipamento para medida de *background* em função do tempo

Fonte: autoria própria



Figura 13 – Conexão direta entre o *in* e o *out* do equipamento com o filtro acoplado por meio de cola sintética para medida de *background* em função do tempo

Fonte: autoria própria

As medidas destes itens foram realizadas com protocolos de 99 ciclos de 10 minutos cada um, repetidos após 10 dias em que o sistema ficou fechado, para verificar o comportamento do *background* no tempo. Esperava-se que após 10 dias, a concentração de atividade de radônio diminuísse caso não houvesse a entrada de ar novo no sistema.

3.9 TESTE DE EVAPORAÇÃO PARA AMOSTRAS DE BAIXA CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra

Para o teste de evaporação de amostras de baixa concentração de ^{226}Ra foram utilizadas várias porções comerciais de água destilada como padrão de branco. Estas porções de água foram misturadas e homogeneizadas para que a amostra final tivesse uma concentração de ^{226}Ra média padronizada. Após a homogeneização, estas amostras passaram por processos de evaporação, realizados com a intenção de aumentar a concentração de ^{226}Ra nas amostras e diminuir os erros relacionados com as medidas.

Os processos de evaporação foram realizados com volumes iniciais de 4000mL, 2000mL, 1000mL, 500mL e 250mL. O volume final obtido nas evaporações ficou próximo à 250mL, que é o volume necessário para preencher os frascos das amostras. A evaporação foi realizada com aquecimento em placa de cerâmica e a água foi postada em vidraria de laboratório, com o cuidado de não se deixar borbulhar, evitando assim que volumes da amostra fossem perdidos para fora do vidro.

Assim como as amostras de água mineral, foco desta pesquisa, estas amostras de água destilada foram armazenadas por 30 dias para atingir o equilíbrio secular entre o ^{226}Ra e ^{222}Rn . Após este tempo foram realizadas as medidas da concentração de ^{226}Ra , utilizando a técnica descrita no item 3.6.

4 RESULTADOS E DISCUSSÕES

4.1 RESULTADOS INICIAIS - PROTOCOLO SUGERIDO PELO MANUAL

Inicialmente foi medida a concentração de atividade de ^{226}Ra em 9 diferentes amostras da água mineral engarrafada e uma amostra da água destilada, seguindo o protocolo de medição sugerido pelo manual do equipamento. Os resultados são apresentados nas Tabelas 8 e 9.

Tabela 8 - Concentração de ^{226}Ra obtida utilizando os protocolos sugeridos pelo manual do equipamento.

Amostra	Protocolo	Concentração (Bq/L)
DESTILADA	WAT 250	$0,16 \pm 0,14$
AM-A	WAT 250	$0,26 \pm 0,19$
AM-B	WAT 40	$2,49 \pm 0,97$
AM-C	WAT 40	$2,07 \pm 2,0$
AM-D	WAT 40	$2,7 \pm 2,1$
AM-E	WAT 40	$3,1 \pm 1,7$
AM-F	WAT 40	$0,8 \pm 1,2$
AM-G	WAT 40	$2,90 \pm 0,47$
AM-H	WAT 250	$0,41 \pm 0,28$
AM-I	WAT 250	$0,185 \pm 0,075$

Praticamente todos os resultados obtidos mostram um nível muito alto de erro, entre 40 e 100%. Esse resultado permite apenas avaliar o nível superior de concentração de atividade sem obter conclusões mais definitivas.

Observa-se que ao se calcular a diferença entre o valor da medida e o valor recomendado como limite (1,0 Bq/L) pela Organização Mundial de Saúde (WHO, 2011), esta deve ser maior que 2 vezes o erro para se poder afirmar, com confiança superior à 95,5%, que a amostra está acima ou abaixo do limite em relação ao valor da medida. Estas considerações estão de acordo com a Teoria de Erros, difundida nos meios científicos (VUOLO, 1998). Desta forma, se a diferença entre o limite e a medida for maior que 3 erros, tem-se certeza de 99,7% ou mais que esta diferença existe. Caso se encontre entre 2 e 3 erros a probabilidade está entre 95,5% e 99,7%. Se a mesma estiver entre 1 e 2 erros a certeza é de 68,3% a 95,5%. E se for menor que 1 erro a probabilidade será menor que 68,3%.

Tabela 9 – Análise detalhada dos dados de concentração de ^{226}Ra (protocolos sugeridos pelo manual) com os limites estabelecidos pela Organização Mundial de Saúde.

Amostra	Concentração ^{226}Ra (Bq/L)	Erro (Bq/L)	2 Erro (Bq/L)	3 Erro (Bq/L)	$ \Delta $ (Bq/L)	Análise para 1Bq/L
DESTILADA	0,16	0,14	0,28	0,42	0,84	---
AM-A	0,26	0,19	0,38	0,57	0,74	****valor abaixo
AM-B	2,49	0,97	1,94	2,91	1,49	**valor muito próximo
AM-C	2,1	2,0	4,0	6,0	1,1	*valor com incerteza muito grande
AM-D	2,7	2,1	4,2	6,3	1,7	*valor com incerteza muito grande
AM-E	3,1	1,7	3,4	5,1	2,1	**valor muito próximo
AM-F	0,8	1,2	2,4	3,6	0,2	* valor com incerteza muito grande
AM-G	2,90	0,47	0,94	1,41	1,90	**** valor acima
AM-H	0,41	0,28	0,56	0,84	0,59	*** valor abaixo
AM-I	0,185	0,075	0,150	0,225	0,815	**** valor abaixo

Obs.: $|\Delta|$ é o módulo da diferença entre a concentração medida e o limite da WHO;

*** $|\Delta| < 1\text{Erro}$. Probabilidade de ter diferença é menor que 68,3%;**

**** $1\text{Erro} < |\Delta| < 2\text{Erro}$. Probabilidade de ter diferença é de 68,3% a 95,5%;**

***** $2\text{Erro} < \Delta < 3\text{Erro}$. Probabilidade de ter diferença é de 95,5% a 99,7%;**

****** $3\text{Erro} < |\Delta|$. Probabilidade de ter diferença é maior de 99,7%**

Na Tabela 9, é possível observar que das 9 amostras analisadas, foi possível chegar a conclusões em apenas quatro delas, das quais três se mostram abaixo deste limite (AM-A, AM-H e AM-I) e uma fica acima do mesmo (AM-G). As demais possuem valores muito próximos ao valor da norma, ou uma incerteza muito grande associada ao resultado. Portanto, considerando as incertezas, conclui-se que as concentrações de ^{226}Ra nas águas minerais apresentadas na Tabela 8, quando comparadas com o limite de 1Bq/L estabelecido pelo WHO (2011), mostram a necessidade de melhorar o processo de medida.

Os valores de concentração de atividade de ^{226}Ra em águas encontrados por pesquisadores de outros países (item 2.2.2) são da ordem de 0,1 Bq/L, ou menores. Os valores apresentados no trabalho de Godoy, Amaral e Godoy (2001) em águas minerais brasileiras variam dependendo da região e o valor médio encontrado para o Brasil foi de 0,027 Bq/L, (Tabela 5). Já os valores apresentados por Martin Sanchez *et. al.* (1999) para a presença de radioatividade alfa total em águas minerais engarrafadas na Espanha, Portugal e França variaram de 0,007 a 8,4 Bq/L.

A partir destas informações, concluiu-se que a exatidão dos resultados obtidos por meio dos protocolos sugeridos pelo manual não foram satisfatórias. Esses resultados se devem ao fato deste trabalho se focar na medida de baixas concentrações de atividade do ^{226}Ra e o

equipamento RAD7 ter seus protocolos desenvolvidos para medidas de radônio em concentrações mais altas. Assim percebeu-se a necessidade de alterar a metodologia e refazer as medidas.

A nova metodologia foi criada com modificações tanto no processo quanto no sistema utilizado. Para isso, foram feitas adaptações na tentativa de diminuir os erros associados e padronizar o *background*. Isto foi necessário pois observou-se uma grande variação na concentração de ^{226}Ra nas amostras e precisava-se saber se estas diferenças realmente existiam, ou se podiam estar associadas a uma variação no *background*, já que a concentração medida tem ordem de grandeza muito pequena em relação a um possível *background*.

Além da padronização do *background*, a alteração na metodologia tem como objetivo diminuir os erros associados à concentração. Com o intuito de obter esta diminuição estipulou-se o aumento do número de medidas para cada amostra.

Desta forma, conclui-se que, quando as concentrações de atividade de radônio medidas são pequenas, e isto acontece quando se pretende quantificar o rádio no equilíbrio secular com o radônio em amostras de águas minerais, os erros dessas medidas são muito grandes, se comparados com as próprias medidas. Portanto, foram realizados testes para alterar a metodologia de medidas, já mostrados no capítulo anterior. A metodologia utilizada nestes testes e os passos que auxiliaram no desenvolvimento do protocolo para medidas de radônio em amostras onde há pouca concentração de atividade de rádio são o resultado desta primeira alteração. Os resultados referentes aos testes de alteração desta metodologia são descritos a seguir.

4.2 RESULTADOS DOS TESTES PARA A ALTERAÇÃO DA METODOLOGIA

4.2.1 *Background*

O equipamento RAD7 mede a atividade de radônio nas águas por emanometria, ou seja, por meio de medidas no ar, após um processo de aeração da amostra. Desta forma,

quando a amostra possui uma atividade de radônio muito baixa é importante saber a concentração de radônio no ar do sistema antes da aeração da amostra, estabelecendo-se assim, um valor para o *background*. O valor do *background* faz parte do cálculo do erro da medida de concentração de atividade da amostra, o que limita a sensibilidade do método. O manual do RAD7 RAD H2O *kit* (DURRIDGE COMPANY Inc., 2009b) sugere preencher o sistema com ar do laboratório antes das medidas.

Nesta etapa da pesquisa várias medidas foram realizadas por meio deste procedimento teste. Os resultados apresentados na Tabela 10 mostram o valor do *background* e o erro associado. O erro do *background* tem valor entre 0,09 e 0,19 Bq/L.

Tabela 10 - Medidas do *background* dos testes de protocolo do sistema aberto.

Teste	BG corrigido WAT250 (Bq/L)	Observações
1	1,01 ± 0,09	15 ciclos de 5 minutos cada um.
2	1,16 ± 0,19	5 ciclos de 5 minutos cada um.
3	1,34 ± 0,12	3 ciclos de 5 minutos cada um.
4	1,10 ± 0,12	5 ciclos de 5 minutos cada um.
5	1,52 ± 0,16	3 ciclos de 5 minutos cada um.
6	0,64 ± 0,18	10 ciclos de 5 minutos cada um.

Com o nível de *background* e o erro da grandeza medida (Tabela 10), não é possível determinar concentrações de atividade de rádio menor que 0,2 Bq/L. Com o objetivo de diminuir o *background*, foi utilizado um filtro de carvão ativado a fim de retirar possíveis fontes de *background* do ar do sistema.

Como resultado preliminar observou-se que o uso do carvão ativado reduziu em, aproximadamente, três vezes o *background* corrigido para o protocolo WAT250 (Tabela 11).

Tabela 11 - Medidas de *background* dos testes de protocolo do sistema aberto utilizando o sistema com carvão ativado

Teste	BG corrigido WAT250 (Bq/L)	Observações
1	0,115 ± 0,042	6 ciclos de 5 minutos cada um.
2	0,156 ± 0,049	8 ciclos de 5 minutos cada um.

Para as medidas de água, de acordo com o manual do equipamento (DURRIDGE COMPANY Inc, 2009b), deve ser utilizado um sistema fechado. Sendo assim, percebeu-se a necessidade de fazer a medida de *background* em sistema fechado para manter as mesmas condições de medida que a amostra de água está sujeita. Antes de se realizar o processo de medida do *background*, foi inserido um filtro de carvão ativado no sistema. É importante

ressaltar que o processo de retirada do filtro provoca, inevitavelmente, contato do ar do sistema com o ar externo. Após a medida de *background* da forma descrita, foi realizada a medida de uma amostra de água destilada com o intuito de simular o processo com uma amostra inerte. A Tabela 12 mostra os resultados encontrados para estas medidas de *background* e água destilada já descontando o *background* realizadas com o sistema fechado após ter sido limpo com carvão ativado.

Os resultados apresentados na Tabela 12 mostram a importância das medidas do *background* e da limpeza do sistema antes da medida da amostra para o cálculo do resultado final. Com este sistema, foi possível diminuir o nível inferior de concentração medida para valores de $\sim 0,030$ - $0,060$ Bq/L com o protocolo WAT250.

Neste caso, a metodologia ainda possuía deficiência, pois no momento da troca da amostra, o ar do sistema entrava em contato com o ar externo. Para evitar isto, e não abrir o sistema, foram adaptados conectores, conforme citado anteriormente no item 3.6, que são discutidos mais detalhadamente do decorrer desta tese.

Tabela 12 - Medidas de background e água destilada do sistema fechado utilizando o carvão ativado para limpar o ar antes das medidas

Teste	BG corrigido WAT250 (Bq/L)	Amostra sem <i>Background</i> (Bq/L)	Observações
1	$0,171 \pm 0,017$	$0,290 \pm 0,029$	6 ciclos de 5 minutos cada um para as medidas da água.
2	$0,141 \pm 0,042$	$0,265 \pm 0,039$	8 ciclos de 5 minutos cada um para as medidas da água.

4.2.2 Tempo de medida

Como proposta apresentada na metodologia, o tempo de medida da amostra foi aumentado com o intuito de diminuir os erros. Vários protocolos foram testados para isto, com êxito. Porém, durante o procedimento, a umidade do sistema ultrapassou os 10% aceitáveis. De acordo com o manual do equipamento (DURRIGE COMPANY Inc., 2009a), medidas em que a umidade ultrapassa 10% indicam apenas um valor limite mínimo medido, podendo esta medida estar acima deste valor mínimo. Durante estes testes foi verificado que,

aproximadamente, 40 minutos de medida é tempo suficiente para que a umidade ultrapassasse 10%, o que, conforme já mencionado, prejudica os resultados.

Desta forma, concluiu-se que seria necessário secar o sistema entre as medidas. Para testar esta proposta de metodologia foram realizadas medidas de água destilada e os resultados são apresentados na Tabela 13. Nesta tabela a coluna “Água destilada – sem *background*” apresenta os valores obtidos para cada experimento tendo descontado o valor do *background* e a coluna “Valor médio” é a média obtida na coluna anterior para os três experimentos apresentados na referida tabela.

Tabela 13 - Resultados das medidas de água destilada para testar o novo sistema

Número do experimento	<i>Background</i> (Bq/L)	Amostra (Bq/L)	Água destilada – sem <i>background</i> (Bq/L)	Valor médio (Bq/L)
1	0,103±0,086	0,037±0,037	-0,066±0,093	0,027±0,044
2	0,069±0,051	0,111±0,037	0,042±0,063	
3	0,000±0,034	0,074±0,074	0,074±0,081	

Infelizmente, a necessidade de atingir o equilíbrio entre ^{222}Rn e ^{226}Ra (ver item 3.3) antes de começar a medição impõe restrições ao procedimento em relação ao tempo de execução. A preparação de cada amostra dura 30 dias. Estes resultados mostram que repetindo as medições é possível atingir o limite superior da sensibilidade de $\sim 0,01$ Bq/L.

4.3 RESULTADOS DA METODOLOGIA OTIMIZADA PARA AS MEDIDAS DE ^{226}Ra EM ÁGUAS MINERAIS

A metodologia otimizada foi aplicada para a análise de 24 amostras de água mineral engarrafada. A Tabela 14 contém os valores encontrados para medidas do *background* e para medidas em conjunto da amostra já com o desconto do *background*. Como mencionado na metodologia, estes cálculos levaram em consideração o valor do *background*, o valor médio das amostras e também o erro associado a estes valores.

A Tabela 15 mostra o resultado final de medição das concentrações de atividade de ^{226}Ra encontradas em 24 amostras de águas minerais. A Tabela 16 exemplifica a análise dos resultados. Os valores específicos encontrados para cada amostra de água encontram-se no Apêndice C.

Tabela 14 – Resultados detalhados usados para os cálculos das medidas das concentrações de ^{226}Ra em águas minerais

Amostra	Background (Bq/L)	Amostra sem Background (Bq/L)
A	0,017 ± 0,022	0,065 ± 0,093
B	0,000 ± 0,009	0,105 ± 0,024
C	0,000 ± 0,009	0,166 ± 0,035
D	0,000 ± 0,009	0,110 ± 0,021
D*	0,000 ± 0,009	0,025 ± 0,018
E	0,009 ± 0,011	0,295 ± 0,059
E*	0,000 ± 0,009	0,125 ± 0,043
F	0,017 ± 0,022	0,199 ± 0,036
G	0,017 ± 0,013	0,091 ± 0,029
H	0,000 ± 0,009	0,059 ± 0,017
I	0,000 ± 0,009	0,116 ± 0,027
J	0,009 ± 0,011	0,058 ± 0,017
K	0,000 ± 0,009	0,066 ± 0,021
L	0,009 ± 0,011	0,075 ± 0,030
M	0,009 ± 0,011	0,199 ± 0,050
N	0,000 ± 0,009	0,116 ± 0,038
O	0,000 ± 0,009	0,076 ± 0,024
P	0,009 ± 0,011	0,274 ± 0,053
Q	0,009 ± 0,011	0,116 ± 0,032
R	0,017 ± 0,013	0,133 ± 0,030
S	0,000 ± 0,009	0,199 ± 0,036
T	0,009 ± 0,011	0,091 ± 0,031
U	0,000 ± 0,009	0,125 ± 0,028
V	0,009 ± 0,011	0,107 ± 0,035
W	0,000 ± 0,009	0,215 ± 0,045
X	0,000 ± 0,009	0,149 ± 0,038

Os resultados apresentados na Tabela 16, quando comparados, considerando os erros, ao limite de 1 Bq/L para concentração de atividade de ^{226}Ra em águas estabelecido no documento da WHO (2011), mostram que das 24 amostras analisadas, todas se apresentaram abaixo do limite. Desta forma, observa-se que os valores apresentados na Tabela 15 se comparados com os resultados anteriormente apresentados na Tabela 8, mostram valores com ordem de grandeza mais próxima dos resultados esperados de acordo com trabalhos de outros autores (MARTIN SANCHEZ *et. al*, 1999; GODOY, AMARAL e GODOY, 2001). Os erros apresentados na Tabela 15 também são menores que os apresentados na Tabela 8, configurando um resultado positivo. Mas, sabe-se que os erros apresentados ainda poderiam ser diminuídos para se obter resultados mais confiáveis.

Tabela 15- Concentração de ^{226}Ra utilizando a técnica desenvolvida

Amostra	Concentração de atividade ^{226}Ra (Bq/L)	Observações
A	$-0,004 \pm 0,093^*$	Valor menor que 1 erro
B	$0,105 \pm 0,042$	
C	$0,166 \pm 0,049$	
D	$0,068 \pm 0,028^{**}$	
E	$0,192 \pm 0,046^{**}$	
F	$0,131 \pm 0,097$	Valor menor que 2 erros
G	$0,023 \pm 0,059$	Valor menor que 1 erro
H	$0,059 \pm 0,038$	Valor menor que 2 erros
I	$0,116 \pm 0,044$	
J	$0,024 \pm 0,048$	Valor menor que 1 erro
K	$0,066 \pm 0,040$	Valor menor que 2 erros
L	$0,041 \pm 0,053$	Valor menor que 1 erro
M	$0,165 \pm 0,067$	
N	$0,116 \pm 0,051$	
O	$0,076 \pm 0,042$	Valor menor que 2 erros
P	$0,239 \pm 0,069$	
Q	$0,082 \pm 0,055$	Valor menor que 2 erros
R	$0,064 \pm 0,060$	Valor menor que 2 erros
S	$0,199 \pm 0,050$	
T	$0,057 \pm 0,055$	Valor menor que 2 erros
U	$0,125 \pm 0,045$	
V	$0,073 \pm 0,057$	Valor menor que 2 erros
W	$0,215 \pm 0,057$	
X	$0,149 \pm 0,051$	

* Resultado negativo devido à subtração do BG.

**Resultados obtidos como média da repetição do procedimento descrito duas vezes.

Entretanto, como já foi citado, os valores de concentração de ^{226}Ra em águas minerais têm ordem de grandeza muitas vezes menor que 0,1 Bq/L. Por isso, percebeu-se a necessidade de fazer medidas de valores nesta ordem de grandeza. A Tabela 15 mostra que entre 24 amostras, 4 possuem resultado menor que 1 erro e 8 possuem valores menores de 2 erros. Somente em 12 amostras é possível afirmar que o valor da concentração de atividade foi obtido. Estes resultados mostram que a metodologia permite obter o valor da concentração quando a mesma ultrapassa 0,1 Bq/L. Desta forma, se fez necessário melhorar a metodologia para poder fazer medidas de valores inferiores a este valor.

Por meio destes resultados pode-se perceber que a metodologia otimizada foi válida para melhorar os resultados, com valores mais próximos dos esperados. Comparando os resultados apresentados nas Tabelas 8 e 15, percebe-se a melhora que o novo protocolo forneceu aos experimentos, o que permitiu a medida de concentrações menores com redução do erro. O erro das medidas, calculado a partir do protocolo otimizado, varia de 0,027 Bq/L a 0,097 Bq/L para medidas nas quais os valores variaram de $-0,004 \text{ Bq/m}^3$ a 0,239 Bq/L.

Por meio da Tabela 15, verifica-se que, embora tenha-se chegado a um resultado satisfatório, era necessário aprimorar o protocolo com o intuito de conseguir erros ainda menores. Assim, foram realizados testes para verificar se seria possível aumentar o tempo de medida. Os resultados foram descritos no item 4.2.

Tabela 16 - Análise detalhada dos dados de concentração de ^{226}Ra (protocolo otimizado) com os limites estabelecidos pela Organização Mundial de Saúde

Amostra	^{226}Ra (Bq/L)	Erro (Bq/L)	2 Erro (Bq/L)	3 Erro (Bq/L)	I Δ I (Bq/L)	Análise para 1 Bq/L
A	-0,004	0,093	0,186	0,279	1,004	**** valor abaixo
B	0,105	0,042	0,084	0,126	0,895	**** valor abaixo
C	0,166	0,049	0,099	0,148	0,834	**** valor abaixo
D	0,068	0,028	0,056	0,084	0,932	**** valor abaixo
E	0,192	0,046	0,092	0,138	0,808	**** valor abaixo
F	0,131	0,097	0,194	0,291	0,869	**** valor abaixo
G	0,023	0,059	0,118	177	0,977	**** valor abaixo
H	0,059	0,038	0,076	0,114	0,941	**** valor abaixo
I	0,116	0,044	0,088	0,132	0,884	**** valor abaixo
J	0,024	0,048	0,096	0,144	0,976	**** valor abaixo
K	0,066	0,027	0,054	0,081	0,934	**** valor abaixo
L	0,041	0,053	0,106	0,159	0,959	**** valor abaixo
M	0,165	0,046	0,092	0,138	0,835	**** valor abaixo
N	10,16	0,051	0,102	0,153	0,884	**** valor abaixo
O	0,076	0,030	0,060	0,090	0,924	**** valor abaixo
P	0,239	0,070	0,140	0,210	0,761	**** valor abaixo
Q	0,082	0,055	0,110	0,165	0,871	**** valor abaixo
R	0,064	0,060	0,120	0,180	0,936	**** valor abaixo
S	0,199	0,040	0,080	0,120	0,801	**** valor abaixo
T	0,057	0,055	0,110	0,165	0,943	**** valor abaixo
U	0,125	0,045	0,090	0,135	0,875	**** valor abaixo
V	0,073	0,057	0,114	0,171	0,927	**** valor abaixo
W	0,216	0,057	0,114	0,171	0,784	**** valor abaixo
X	0,149	0,042	0,084	0,126	0,851	**** valor abaixo

Obs.: $|\Delta|$ é o módulo da diferença entre a concentração medida e o limite da WHO;

*** $|\Delta| < 1\text{Erro}$. Probabilidade de ter diferença é menor que 68,3%;**

**** $1\text{Erro} < |\Delta| < 2\text{Erro}$. Probabilidade de ter diferença é de 68,3% a 95,5%;**

***** $2\text{Erro} < \Delta < 3\text{Erro}$. Probabilidade de ter diferença é de 95,5% a 99,7%;**

****** $3\text{Erro} < |\Delta|$. Probabilidade de ter diferença é maior de 99,7%**

4.4 RESULTADOS DOS TESTES DE VARIAÇÃO DO *BACKGROUND* EM FUNÇÃO DO TEMPO DE MEDIDA

Na tentativa de diminuir os erros, uma proposta foi aumentar o tempo da medida, fazendo acréscimos tanto no número de ciclos da medida do *background* quanto no número de vezes que o protocolo WAT250 foi realizado. Desta forma, percebeu-se a necessidade de verificar a variação do *background* em função do tempo como um pré-teste para a proposta.

Desta forma, mediu-se o *background* durante 990 minutos, e os resultados são apresentados na Figura 14.

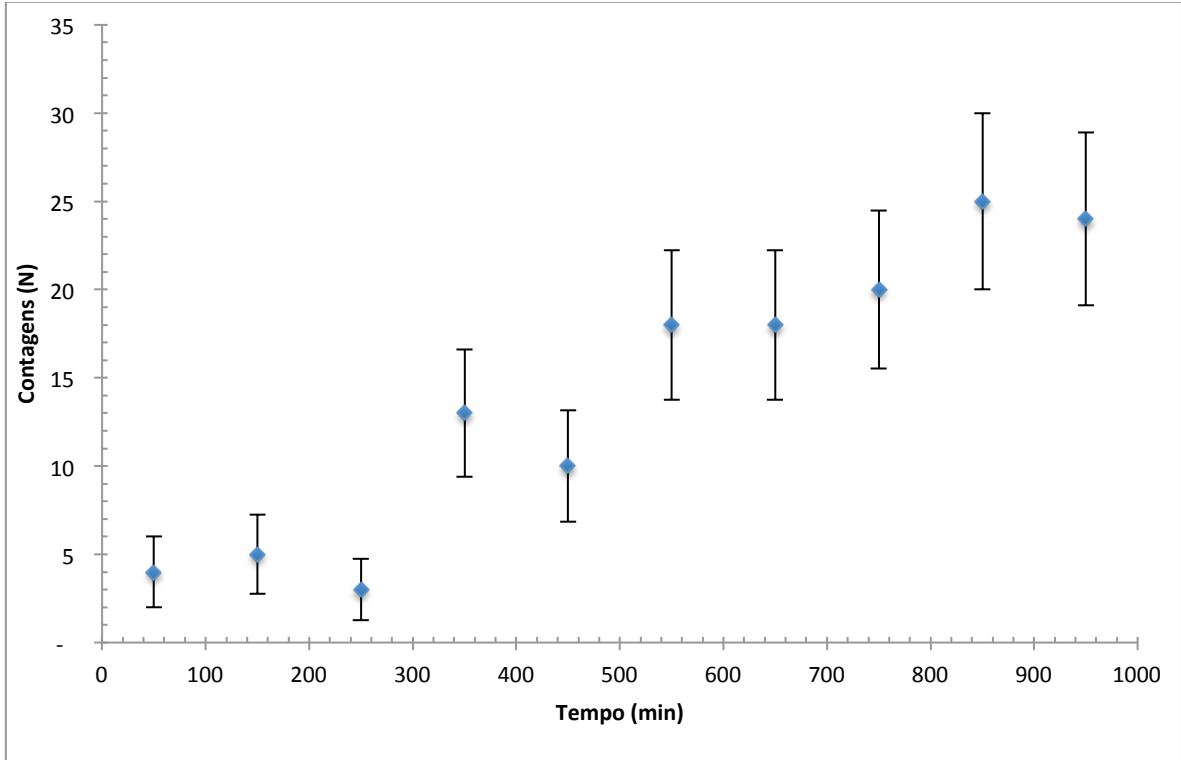


Figura 14 - Gráfico da variação do *background* em função do tempo de medida

Este gráfico (Figura 14) mostra que o sistema não mantém o valor do *background* com o passar do tempo, para tempos de medida muito longos.

O aumento do *background* em função do tempo pode ter várias causas. Entre elas pode-se citar (1) a sílica usada para secar o sistema como uma fonte de *background*; (2) as conexões sem sistemas de vedação perfeitos; (3) o sistema do próprio detector sem vedação perfeita; e (4) o detector com *background* intrínseco. Os itens 1 e 2 foram avaliados e os resultados são apresentados nos gráficos a seguir (Figura 15 à Figura 18).

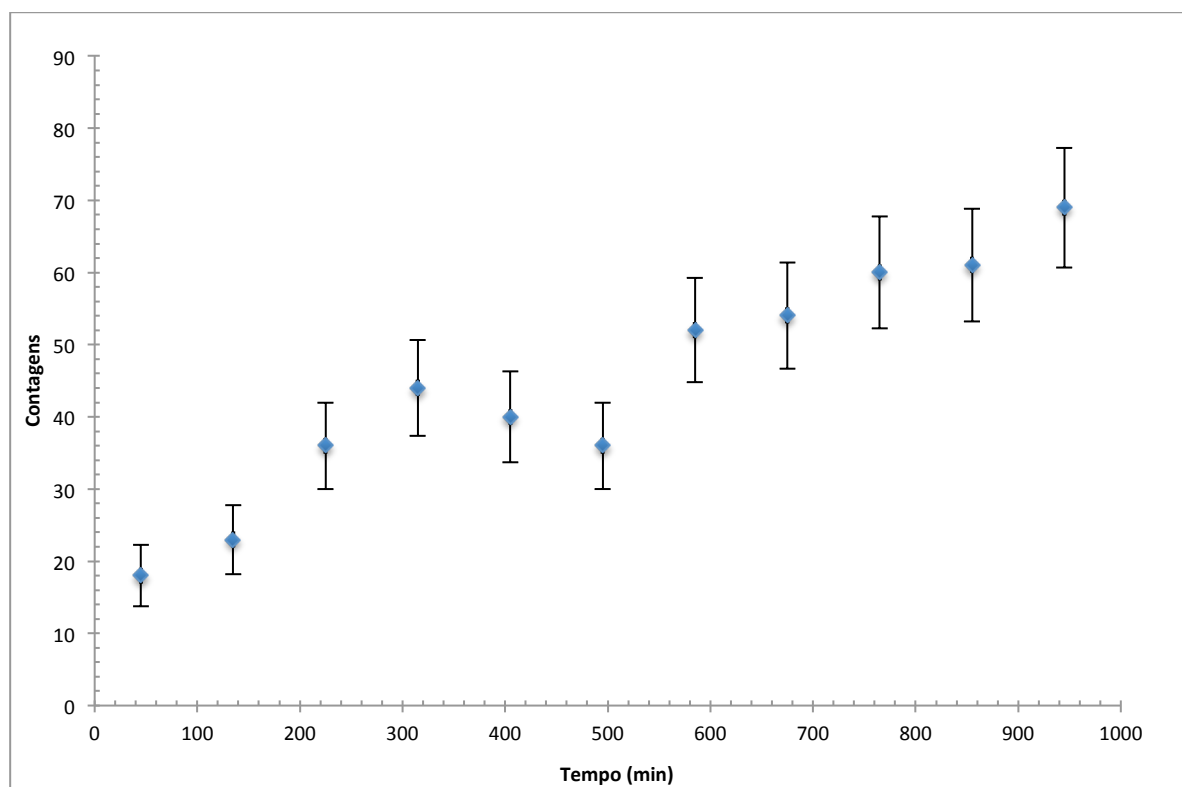


Figura 15 - Resultado do teste de variação do BG em função do tempo com exclusão da sílica do sistema por meio de novas conexões

A Figura 15 mostra os resultados do teste de variação do *background* em função do tempo de medida, em um circuito que exclui a sílica do sistema. Desta forma, pode ser testado se a sílica é uma fonte de *background* para o sistema. Na análise do gráfico da Figura 15, no qual houve a exclusão da sílica, percebe-se o mesmo comportamento do *background* que aumenta em função do tempo. Assim, foi possível verificar que a sílica não é a fonte principal de radônio no sistema.

A análise das Figura 14 e 15 mostra que toda a metodologia de medida deve ser realizada nos primeiros 100-200 minutos depois da limpeza, incluindo a medida do *background* e da amostra de água.

A Figura 16 mostra resultados da variação do *background* em função do tempo de medida para o primeiro e 13º dia. Durante este período o sistema permaneceu fechado. Estes resultados foram obtidos no caso da conexão direta entre a entrada e a saída (*in* e *out*) do sistema, apenas com o uso do filtro na entrada do sistema para a medição, como já mostrado na Figura 11.

Como o intervalo entre as medidas foi de 13 dias, era esperado que esses valores médios diminuíssem devido ao decaimento do ^{222}Rn e filhos presentes no sistema.

Considerando que os valores aumentaram, inferiu-se que o próprio equipamento, alguma conexão das mangueiras com a entrada ou saída do equipamento, ou ainda, com o filtro, não estejam vedadas suficientemente.

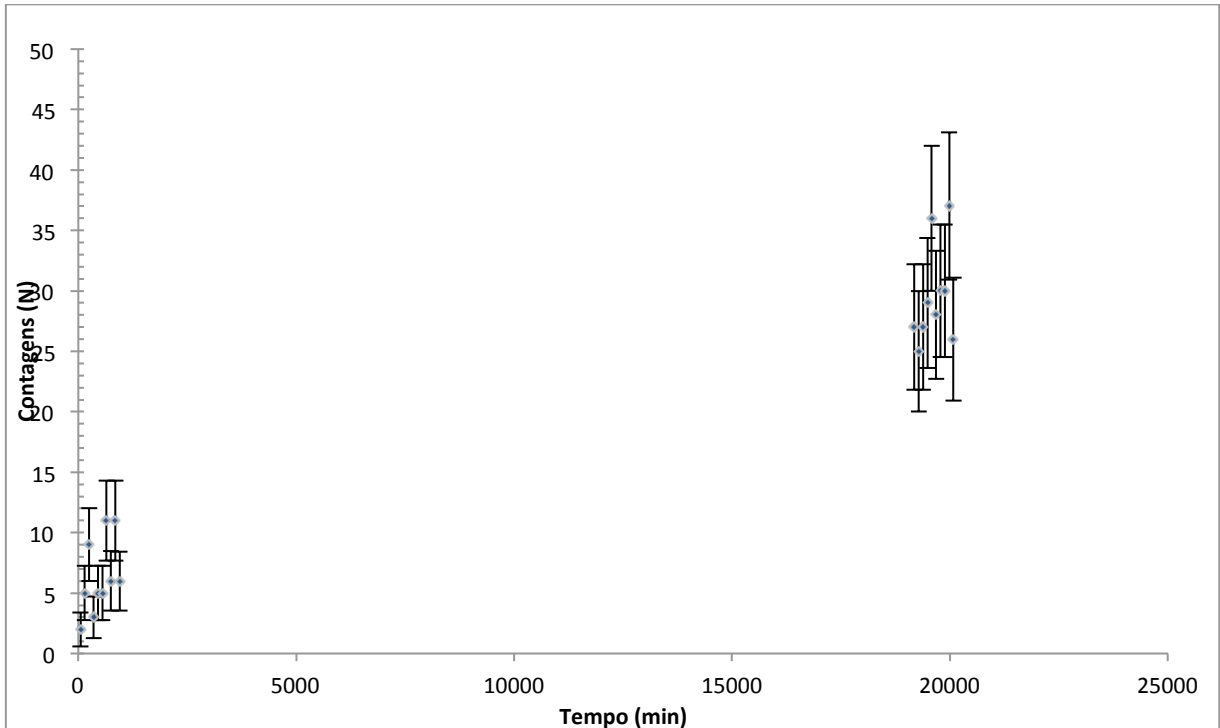


Figura 16 - Resultado do teste de variação do BG em função do tempo com conexão direta no primeiro dia e aproximadamente 13 dias depois

Com o intuito de testar a vedação nas conexões entre as mangueiras e o filtro, o mesmo foi completamente colado, conforme já mostrado na Figura 13 (p. 58). A Figura 17 mostra os resultados obtidos para o teste com o filtro completamente colado no primeiro e no 12º dia. Percebe-se o aumento do número de contagens em ambos os gráficos, o que mostra que este aumento não acontece somente pelas conexões das mangueiras com o filtro.

O gráfico na Figura 18 apresenta os resultados para os experimentos com uma pequena mangueira com conexão direta entre a entrada e saída do equipamento, sem o uso de filtro algum (Figura 12) em medidas realizadas durante 10 dias.

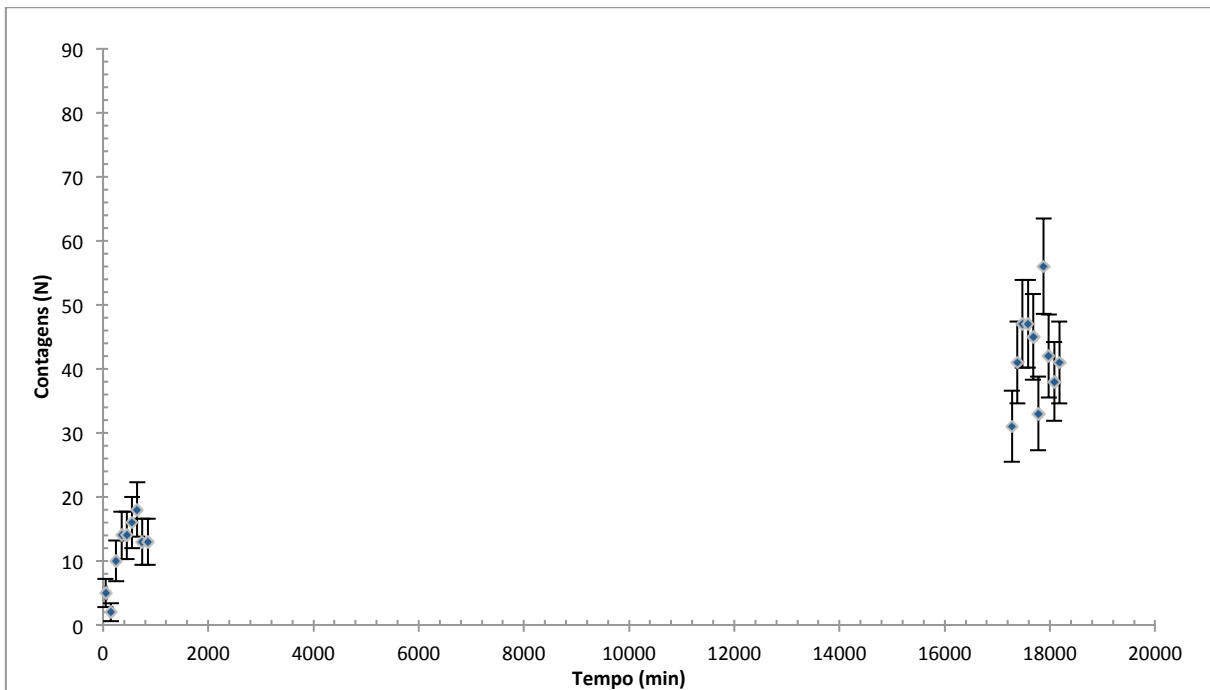


Figura 17 - Resultados da medida de *background* com a menor conexão entre o *in* e o *out* utilizando um filtro completamente colado

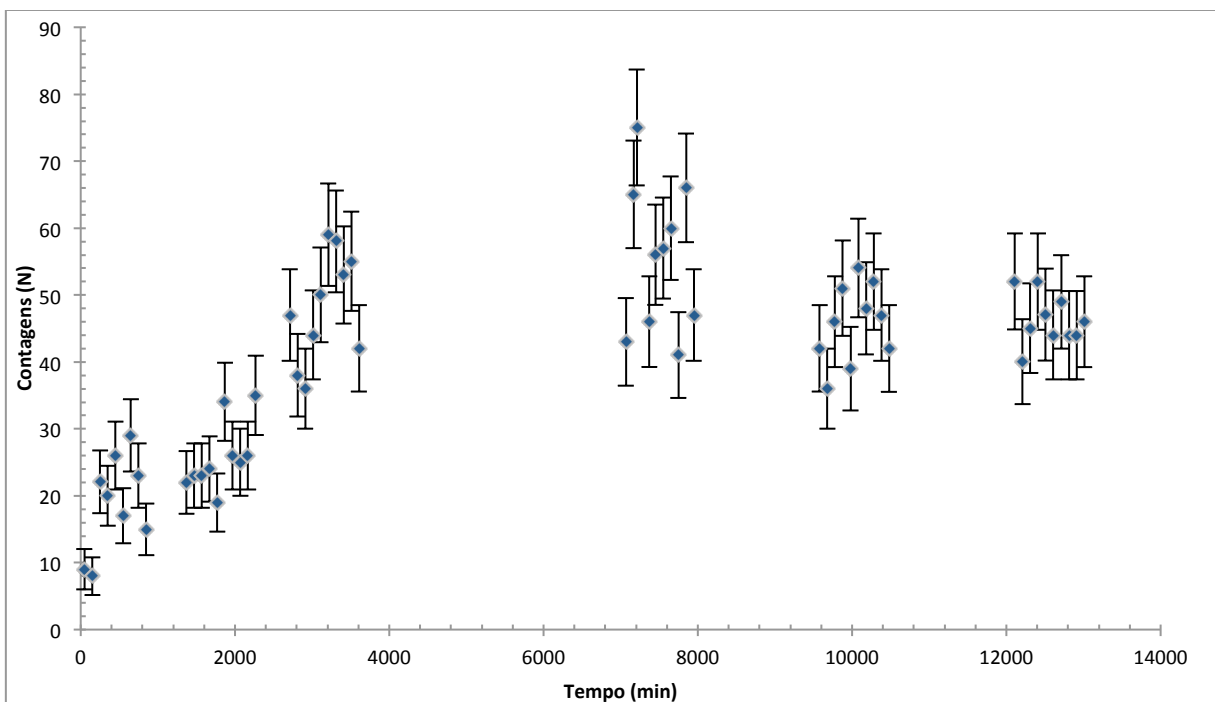


Figura 18 - Resultados da medida de *background* com a menor conexão entre o *in* e o *out* sem o uso do filtro

O resultado mostra que a fonte de ^{222}Rn está presente dentro do próprio equipamento e não pode ser eliminada por meio de mudanças na parte externa. Logo depois da limpeza, o nível do radônio começa a aumentar. Com o tempo, a influência do decaimento aumenta e o

sistema entra em equilíbrio. Observa-se no gráfico da Figura 18 que este equilíbrio é atingido, mas com nível de *background* muito mais alto que se comparado ao nível inicial.

4.5 RESULTADOS PARA OS TESTES DA METODOLOGIA DE EVAPORAÇÃO

Uma alternativa encontrada para tentar diminuir os erros das medidas de baixas concentrações de ^{226}Ra em águas, foi fazer a evaporação das amostras antes da medida de ^{226}Ra . A evaporação deve aumentar a concentração de atividade do ^{226}Ra e assim, efetivamente, diminuir o erro relativo. Para testar a técnica, primeiramente foram evaporadas amostras de água destilada que foi usada como um padrão branco. O experimento foi repetido duas vezes.

A Tabela 17 e a Figura 19 mostram os resultados obtidos na evaporação das amostras de água destilada. Os valores já estão corrigidos para o volume de 250 mL e representam a mesma amostra, devendo assim ter o mesmo valor. Espera-se que a curva ajustada seja uma linha reta. Os valores encontrados para água destilada são bastante baixos, o que realmente representa o padrão branco, como esperado. Os dois experimentos deram resultados estatisticamente iguais.

Tabela 17 – Concentração de Atividade de ^{226}Ra em amostras de água destilada evaporadas

Volume Inicial – Volume Final (mL)	Concentração de ^{226}Ra (Bq/L)	
	Experimento 1	Experimento 2
4000-250	0,0034 ± 0,0027	-0,0010 ± 0,0029
2000-250	0,0029 ± 0,0073	-0,0036 ± 0,0064
1000-250	0,013 ± 0,012	0,010 ± 0,011
500-250	0,010 ± 0,021	0,015 ± 0,022
250-250	0,083 ± 0,041	-

A partir da análise dos resultados percebe-se a diminuição dos erros e a possibilidade de medir concentrações de atividade de ^{226}Ra até $\sim 0,001$ Bq/L.

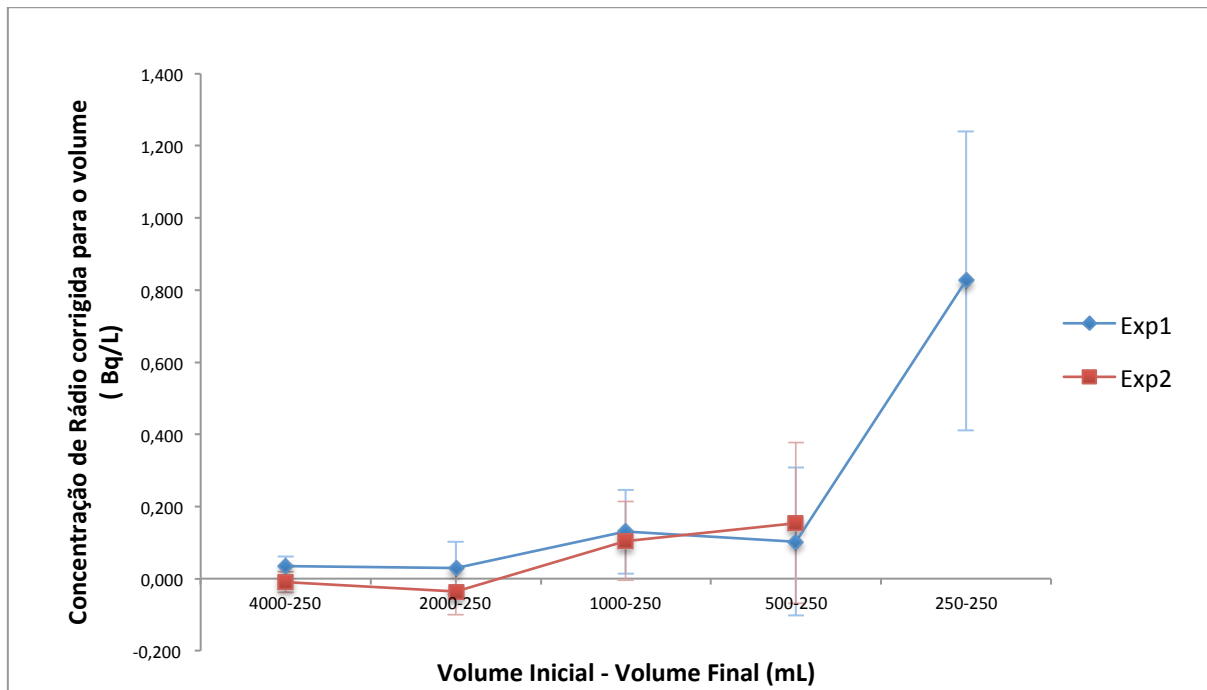


Figura 19 – Resultados das concentrações de ^{226}Ra em amostras de água destilada evaporadas para os experimentos realizados

5 CONCLUSÕES

Com relação à técnica de medição de concentração de atividade de ^{226}Ra com o uso do equipamento RAD7 (DurrIDGE Company, Inc.), em águas minerais potáveis engarrafadas, foi possível concluir que o detector eletrônico pode ser utilizado nas medidas de ^{226}Ra em águas para baixas concentrações do mesmo, mas, para isto, deve ser utilizada a técnica desenvolvida neste trabalho a fim de otimizar o procedimento.

O trabalho desenvolvido propiciou uma técnica inovadora que permite mensurar baixas concentrações de ^{226}Ra . Por meio do desenvolvimento da técnica foi possível obter valores da concentração de ^{226}Ra em níveis próximos a 0,1 Bq/L, o que não ocorre quando utilizado o procedimento padrão descrito no manual do equipamento.

Quando utilizada a metodologia proposta no manual do equipamento, verificou-se que os erros associados apresentavam a mesma ordem de grandeza da medida. Com essa metodologia não foi possível chegar a conclusões definitivas em relação ao limite recomendado. Além disso, os valores obtidos da concentração de atividade de ^{226}Ra apresentaram ordem de grandeza maior que os esperados, quando comparadas com estudos anteriores. Sendo assim, verificou-se a necessidade de otimizar o processo de medida.

Os experimentos mostraram que a fonte principal do alto nível de erro era o ar do ambiente, e que com o isolamento do sistema e a limpeza por meio de carvão ativado foi possível reduzir o erro de medição até ~0,05 Bq/L. A repetição das medidas da mesma amostra fez com que fosse possível a medição de concentrações com erro de até ~0,01 Bq/L.

A análise da concentração de atividade de ^{226}Ra em 24 amostras de água mineral engarrafada, por meio da nova metodologia (sem repetições) mostrou que em 50% dos casos, quando a concentração de atividade é maior que 0,1 Bq/L, foi possível obter o valor da mesma. Em outros casos, a metodologia permitiu avaliar, apenas, o limite superior da concentração devido ao alto nível de erro.

O estudo do *background* do equipamento RAD7 mostrou que o próprio equipamento possui fonte de ^{222}Rn inerente, o que não permite diminuir o erro das medidas por meio do aumento do tempo de medição. Assim, a análise de cada amostra deve ser concluída dentro de 100-200 minutos após a limpeza do sistema.

A aplicação do processo de evaporação na preparação preliminar das amostras permitiu reduzir o erro de medição em até ~0,001 Bq/L.

Desta forma, foi desenvolvida uma nova técnica para medidas de ^{226}Ra em águas de baixa concentração de atividade (valores menores que 0,1 Bq/L) com a utilização do equipamento RAD7. A maior dificuldade encontrada para o desenvolvimento da técnica foi diminuir os erros associados às medidas. Para desenvolver a metodologia otimizada foram realizados diversos testes que propiciaram a diminuição dos erros e asseguraram uma técnica inovadora para medidas de baixas concentrações de ^{226}Ra em água com o uso do detector eletrônico.

Quando aplicada a metodologia otimizada e proposta no presente trabalho foi possível concluir que (1) todas as amostras analisadas apresentaram valores abaixo dos estabelecidos pelas normas e recomendações, e (2) os valores encontrados para as amostras analisadas possuem ordem de grandeza semelhante às encontradas na literatura.

A metodologia proposta foi testada e utilizada por outros pesquisadores, como na dissertação de mestrado de Carla Pereira Ricardo, intitulada “ESTUDO DE RADIONUCLÍDEOS NATURAIS EM ÁGUAS DE AQUÍFEROS DA REGIÃO METROPOLITANA DE BELO HORIZONTE” realizada no Centro de Desenvolvimento e Tecnologia Nuclear (CDTN). Com isso, a presente técnica se mostra uma boa alternativa na diminuição de erros e solução para o problema da umidade do sistema.

6 SUGESTÕES PARA TRABALHOS FUTUROS

Os trabalhos metodológicos que desenvolvem técnicas de medidas de baixas concentrações de ^{226}Ra em águas são importantes para assegurar a confiabilidade das mesmas. Sendo assim, propõe-se a continuidade de trabalhos focados na melhoria de técnicas que podem ser desenvolvidas no Laboratório de Radiações Ionizantes da UTFPR ou em outro laboratório que possua os mesmos equipamentos.

O presente trabalho poderá ter continuidade por meio de pesquisas com técnica de evaporação. No já estão sendo realizadas medidas com amostra de água com concentração conhecida de ^{226}Ra em torno de 0,1 Bq/L, seguindo a técnica de evaporação em amostras de água destilada proposta no presente trabalho.

Além dos trabalhos relacionado à otimização de metodologias, outra sugestão para trabalhos futuros é a aplicação da técnica otimizada neste trabalho em uma quantidade de amostras maior, para que se possa oferecer uma visão das concentrações de ^{226}Ra em águas minerais engarrafadas de outras regiões do Brasil.

REFERÊNCIAS

ATSDR – Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Public Health Statement Radium. Atlanta, 1990.

BRASIL. Decreto-Lei nº 7.841, de 8 de agosto de 1945. **Código de Águas Minerais**.

BRASIL. Resolução da Diretoria Colegiada ANVISA nº 173, de 13 de setembro de 2006. **Dispõe sobre o Regulamento Técnico de Boas Práticas para industrialização e Comercialização de Água Mineral Natural e a Lista de Verificação das Boas Práticas para Industrialização e Comercialização de Água Mineral e de Água Natural**. Diário Oficial da União, Brasília, DF, 15 set. 2006. Seção 1.

BRASIL. Portaria Ministério da Saúde (MS) nº 2.914, de 12 de dezembro de 2011. **Dispõe sobre os procedimentos de controle e de vigilância da qualidade da água para consumo humano e seu padrão de potabilidade**. Diário Oficial da União, Brasília, DF, 14 dez. 2011. Seção 1.

CEMBER, H. **Introduction to Health Physics**, New York: Pergamon Press Inc, 1983.

COMMISSION RECOMMENDATION of the Protection of the Public Against Exposure to Radon in Drinking Water Supplies. **The Commission of the European Communities. Official Journal of the European Communities**. Document number 4589, 2001.

CORRÊA, Janine. N. **AVALIAÇÃO DOS NÍVEIS DE CONCENTRAÇÃO DE RADÔNIO EM AMBIENTES E ÁGUAS DE POÇOS NO ESTADO DO PARANÁ**. 2011. Tese (Doutorado) - Curso de Engenharia Elétrica e Informática Industrial, CPGEI, UTFPR, Curitiba, 2011.

DURRIDGE COMPANY Inc. **RAD7 RADON DETECTOR User Manual**. USA: DurrIDGE, 2009a.

DURRIDGE COMPANY Inc. **RAD7 RAD H₂O Radon in Water Accessory Owner's Manual**. USA: DurrIDGE, 2009b.

EISENBUD M.; GESELL, T. **Environmental Radioactivity From Natural, Industrial and Military Sources**. 4^a ed. Califórnia: Academic Press, 1997.

GODOY, J.M., AMARAL, E.C.S. e GODOY, M.L.D.P. Natural radionuclides in Brazilian mineral water and consequent doses to the population. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 53, p. 175-182, 2001.

HEYDE, K. **Basic Ideas and Concepts in Nuclear Physics: An Introduction Approach**. 2 ed. London: Institute of Physics Publishing, 1999.

ICRP - International Commission on Radiological Protection. **ICRP60 - Recommendations of the International Commission on Radiological Protection**. Oxford: Pergamon Press, v. 2, n. 1-3, 1991.

KHAYATZADEH MAHANI, M., CHALOOSI, M., KHANCHI, A.R.A new method for simultaneous determination of ^{226}Ra and uranium in aqueous samples by liquid scintillation using chemometrics. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 275 (2), p. 427-432, 2008.

KLEINSCHMIDT, R., AKBER, R. Naturally occurring radionuclides in materials derived from urban water treatment plants in southeast Queensland, Australia. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 99, p. 607-620, 2008

LANL. LOS ALAMOS NACIONAL LABORATORY, PERIODIC TABLE OF ELEMENTS. Disponível em <http://periodic.lanl.gov/index.shtml>. Acesso em: outubro de 2012.

MARTIN SANCHEZ, A., RUBIO MONTERO, M.P., GOMEZ ESCOBAR, V., JURADO VARGAS, M. Radioactivity in bottled mineral Waters. **Applied Radiation Isotopes**, v. 50, p. 1049-1055, 1999.

NNDC - National Nuclear Data Center. **Chart of Nuclides from Brookhaven National Laboratory**. Disponível em: www.nndc.bnl.gov/chart. Acesso em: fevereiro de 2011.

PALOMO, M., PENALVER, A., BORRULL, F., AGUILAR, C. Measurement of radioactivity in bottled drinking water in Spain. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 65, p. 1165-1172, 2007.

POSCHL, M. e NOLLET, M.L. **Radionuclide concentrations in food and the environment**. Flórida: CRC Press, 2006.

RICARDO, C. P. **ESTUDO DE RADIONUCLÍDEOS NATURAIS EM ÁGUAS DE AQUÍFEROS DA REGIÃO METROPOLITANA DE BELO HORIZONTE**. 2012. Dissertação (Mestrado) - Programa De Pós-graduação Em Ciências e Técnicas Nucleares, UFMG, Belo Horizonte, 2012.

SCHAUER, D.M. e LINTON O.W. National Council on Radiation Protection and Measurement Report Shows Substantial Medical Exposure Increase. **Radiology**. v. 253, p. 293-296, 2009.

SHUKTOMOVA, I.I. e RACHKOVA N.G. Determination of ^{226}Ra and ^{228}Ra in slightly mineralized natural waters. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 102, p. 84-87, 2011.

SUJO, L.C., MONTERO CABRERA, M. E., VILLALBA, L., RENTERÍA VILLALOBOS, M., TORRES MOYE, E., GARCÍA LEÓN, M., GARCÍA-TENORIO, R., MIRELES GARCIA, F., HERRERA PERAZA, E. F., SÁNCHEZ AROCHE, D. Uranium-238 and thorium-232 series concentrations in soil, radon-222 indoor and drinking water concentrations and dose assessment in the city of Aldama, Chihuahua, Mexico. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 77, p. 205-219, 2004.

UNSCEAR - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **IONIZING RADIATION: SOURCES AND BIOLOGICAL EFFECTS**, Anexo B, 1982. UNSCEAR Report to the United Nations General Assembly.

UNSCEAR - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **Sources and Effects of Ionizing Radiation**, Anexo A, 1993. UNSCEAR Report to the United Nations General Assembly.

UNSCEAR - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **Sources and Effects of Ionizing Radiation**, Anexo I, 2000. UNSCEAR Report to the United Nations General Assembly.

UNSCEAR - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **Sources and Effects of Ionizing Radiation**, anexoB: “Exposures of Public and Workers from Various Sources of Radiation”, 2008. UNSCEAR Report to the United Nations General Assembly.

USPHS e USEPA – United States Public Health Service and United States Environmental Protection Agency. **Toxicological Profile for Radium**. Agency for Toxic Substances and Disease Registry. Atlanta: 1990.

USEPA – United States Environmental Protection Agency. Radionuclides Notice of Data Availability. **Technical Support Document**, 2000.

VDOVENKO, V. M., DUBASOV, YU.V. **Química Analítica de Rádio**. São Petersburgo, Rússia: NAUKA, 1973.

VIETROGOSKI, Robert. **University Libraries Special Collections: U.S. Radium Corporation East Orange, NJ. New Jersey, 2001**. Disponível em: <http://libraries.umdj.edu/History_of_Medicine/USRadiumCorp.html>. Acesso em: 7 fev. 2013.

VUOLO, J. H. **Fundamentos da Teoria dos Erros**. 2ª ed. São Paulo: Edgard Blucher Ltda., 1998.

WHO – World Health Organization. **Handbook on Indoor Radon**. A Public Health Perspective, WHO press, 2009.

WHO – World Health Organization. **Guidelines for drinking-water quality**. 4a ed. WHO press, 2011.

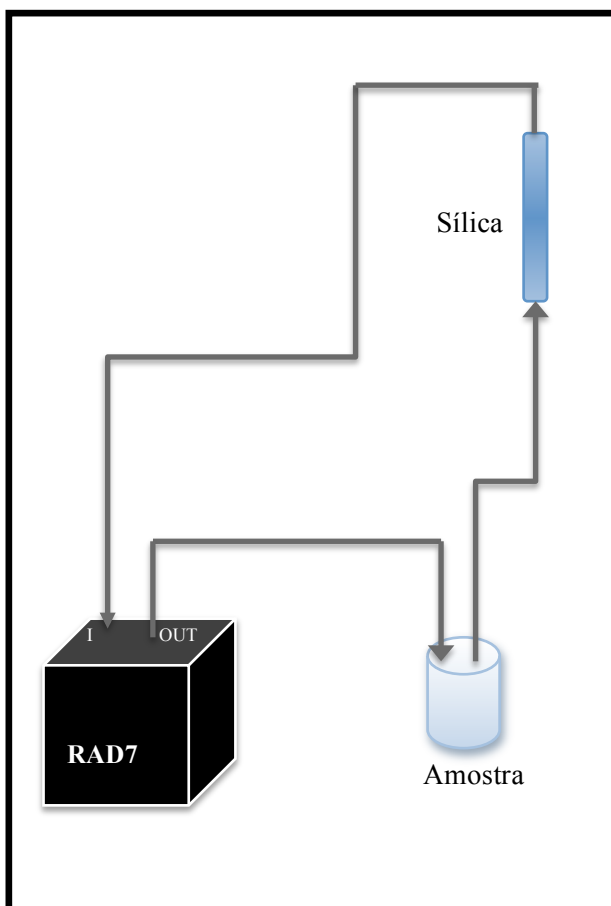
APÊNDICE A – PUBLICAÇÕES SOBRE RADÔNIO DO GRUPO VINCULADO AO LABORATÓRIO DE RADIAÇÕES DA UTFPR

1. KAPPKE, Jaqueline ; Sergei A. Pashchuk ; Zildete Rocha ; CORREA, Janine Nicolosi ; DENYAK, Valeriy Viktorovich ; Talita O. Santos ; MarilsonReque . RADIUM ACTIVITY MEASUREMENTS IN BOTTLED MINERAL WATER. In: 2011 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011, 2011, Belo Horizonte, MG, Brazil. Abstracts and Papers of 2011 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011. Rio de Janeiro, Brazil: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR - ABEN, 2011. v. 1. p. 19-26.
2. CORREA, Janine Nicolosi ; Sergei A. Pashchuk ; Allan Felipe NunesPerna ; KAPPKE, Jaqueline ; Flávia Del Claro ; DENYAK, Valeriy Viktorovich ; SCHELIN, Hugo Reuters ; Zildete Rocha . RADON AND RADIUM MEASUREMENT IN WELL WATER AT CURITIBA (PR), BRAZIL. In: 2011 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011, 2011, Belo Horizonte, MG, Brazil. Abstracts and Papers of 2011 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011. Rio de Janeiro, Brazil: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR - ABEN, 2011. v. 1. p. 9-18.
3. Flávia Del Claro; Sergei A. Pashchuk; CORREA, Janine Nicolosi; Zildete Rocha; KAPPKE, Jaqueline; Allan Felipe Nunes Perna; SCHELIN, Hugo Reuters; Talita O. Santos. INDOOR RADON MEASUREMENTS IN DWELLINGS AND WORKPLACES OF CURITIBA URBAN AREA (BRAZIL). In: 2011 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011, 2011, Belo Horizonte, MG, Brazil. Abstracts and Papers of 2011 International Nuclear Atlantic Conference - INAC 2011. Rio de Janeiro, Brazil : ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR - ABEN, 2011. v. 1. p. 27-36.
4. Sergei A. Pashchuk; CORREA, Janine Nicolosi; KAPPKE, Jaqueline; SCHELIN, Hugo Reuters; DENYAK, Valeriy Viktorovich; Laércio Barbosa; Allan Felipe Nunes Perna. Current Status of Radon and Radium Monitoring at the Federal University of Technology (UTFPR). In: XXXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, 2011, Foz do Iguaçu, PR. Anais de XXXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil. São Paulo, SP : Sociedade Brasileira de Física, 2011. v. 1. p. 7-7.
5. KAPPKE, Jaqueline ; CORREA, Janine Nicolosi ; Sergei A. Pashchuk ; SCHELIN, Hugo Reuters ; DENYAK, ValeriyViktorovich ; MarilsonReque . Radium Measurements in Bottled Mineral Water at Curitiba (PR), Brazil. In: XXXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, 2011, Foz do Iguaçu, PR. Anais de XXXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil. São Paulo, SP : Sociedade Brasileira de Física, 2011. v. 1. p. 1-1
6. CORREA, Janine Nicolosi ; KAPPKE, Jaqueline ; Sergei A. Pashchuk ; SCHELIN, Hugo Reuters ; DENYAK, ValeriyViktorovich ; Allan Felipe Nunes Perna . Indoor Radon

- Measurements in Dwellings of Curitiba (PR) Urban Area. In: XXXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, 2011, Foz do Iguaçu, PR. Anais de XXXIV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil. São Paulo, SP : Sociedade Brasileira de Física, 2011. v. 1. p. 2-2
7. CORREA, Janine Nicolosi ; KAPPKE, Jaqueline ; Sergei A. Pashchuk ; SCHELIN, Hugo Reuters ; DENYAK, Valeriy Viktorovich ; Allan Felipe Nunes Perna ; Marilson Reque . CURRENT STATUS OF RADON AND RADIUM ACTIVITY MEASUREMENTS IN WATER AT THE FEDERAL UNIVERSITY OF TECHNOLOGY (UTFPR, BRAZIL). In: International Conference on Development and Applications of Nuclear Technologies - NUTECH-2011, 2011, Krakow, Poland. Program and abstracts of the International Conference on Development and Applications of Nuclear Technologies - NUTECH 2011. Kraków, Poland : AGH University of Science and Technology, 2011. v. 1. p. 1-1.
 8. FIOR, Loriane ; CORREA, Janine Nicolosi ; Sergei A. Pashchuk ; DENYAK, Valeriy Viktorovich ; SCHELIN, Hugo Reuters ; Brigitte R. S. Pecequilo ; KAPPKE, Jaqueline . Activity Measurements of Radon from Construction Materials. Applied Radiation and Isotopes **JCR**, v. 70, p. 1407-1410, 2012.
 9. CORREA, Janine Nicolosi ; KAPPKE, Jaqueline ; Paschuk, Sergei Anatolyevich ; SCHELIN, Hugo Reuters ; DENYAK, Valeriy Viktorovich ; Allan Felipe Nunes Perna ; Marilson Reque . Present Status of Radon and Radium Activity Measurements in Well and Bottled Water at the Federal University of Technology (UTFPR, Brazil). In: 13th International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA13), 2012, Glasgow, Scotland. IRPA13 Abstracts. Fontenay-aux-Roses, France: International Radiation Protection Association, 2012. v. 1. p. 2-2.
 10. CORREA, Janine Nicolosi ; Flávia Del Claro ; Pashchuk, Sergei A. ; Allan Felipe Nunes Perna ; DENYAK, Valeriy Viktorovich ; SCHELIN, Hugo Reuters ; Zildete Rocha ; Talita O. Santos . Radon Monitoring at Workplaces of Curitiba, PR (Brazil).. In: XXXV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil, 2012, Maresias, SP, Brazil. Programa e Resumos de XXXV Reunião de Trabalho sobre Física Nuclear no Brasil. São Paulo, SP: Sociedade Brasileira de Física - SBF, 2012. v. 1. p. 29-29.

APÊNDICE B – RESUMO DA METODOLOGIA SUGERIDA PELO MANUAL PARA MEDIDAS DE RADONIO COM O USO DO RAD7

- Montar o sistema de acordo com a figura a seguir. Escolher a sílica de acordo com o procedimento.



-Antes de qualquer medida o equipamento deve estar livre de radônio. Para isso, faz-se o ar do ambiente circular pelo equipamento. A sílica grande deve estar conectada às mangueiras, então, desconecta-se a mangueira do out no equipamento. Um frasco vazio deve estar conectado ao sistema. Segue-se os comandos: **MENU, TEST, ENTER, PURGE e ENTER.**

-Após 10 minutos é reconectada a mangueira no out e a sílica menor deve ser conectada ao sistema. Se a umidade estiver muito alta (64%), é usada a sílica maior, até que a umidade abaixe até, aproximadamente, 15% para então usar a sílica menor. O objetivo é secar o ar interno do equipamento, seguindo os seguintes comandos: **MENU, TEST, ENTER, PURGE e ENTER.** Quando a umidade ficar abaixo de 6% é possível começar a medida de água.

-Para a medida de água o equipamento tem dois protocolos, um para frascos de 40ml (WAT-40) e outro para frascos de 250ml (WAT250). Substitui-se o frasco vazio, usado enquanto o ar do equipamento foi seco, pelo frasco da amostra a ser analisada. Para selecionar o protocolo segue-se os seguintes passos: **MENU, ENTER, SETUP, ENTER, PROTOCOL, WAT-40 (ou WAT250) e ENTER.**

- Então, inicia-se a medida da água: **MENU, TEST, ENTER, START e ENTER.** O protocolo para medida de água fará quatro medidas de cinco minutos cada.

**APÊNDICE C – TABELAS UTILIZADAS NOS CÁLCULOS DAS
CONCENTRAÇÕES DE ²²⁶Ra EM ÁGUAS MINERAIS COM O USO DA
METODOLOGIA OTIMIZADA**

OBS.: Todos os valores apresentados nestas tabelas encontram-se em Bq/m³. As tabelas encontram-se em ordem cronológica conforme o livro de registro das atividades do equipamento RAD7 no Laboratório de Radiações Ionizantes da UTFPR.

Data: 15/08/2011		AMOSTRA B	
		x	(media-x) ²
		0	13480
		148	1017
		148	1017
		0	13480
		146	894
		148	1017
		295	32004
		295	32004
		292	30940
		148	1017
BG		0	13480
X	ΔX	148	1017
0	17,13	146	894
0	17,25	148	1017
0	17,25	0	13480
0	17,25	0	13480
Média	SD	Média	SD
0	--	116	107
Erro	8,6	Erro	27
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
105	96	105	42
Erro corrigido vol	24		

Data: 16/08/2011		AMOSTRA C	
		x	(media-x) ²
		146	1468
		0	33971
		0	33971
		148	1319
		146	1468
		295	12252
		0	33971
		295	12252
		0	33971
		295	12252
BG		443	66919
X	ΔX	295	12252
0	17,125	0	33971
0	17,25	295	12252
0	17,25	443	66919
0	17,25	148	1319
Média	SD	Média	SD
0	--	184	157
Erro	8,6	Erro	39
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
166	142	166	49
Erro corrigido volume	35		

Data: 17/08/2011		AMOSTRA D (250ml)	
		x	(media-x) ²
		146	1256
		148	1401
		148	1401
		148	1401
		0	12224
		148	1401
		148	1401
		148	1401
		146	1256
		0	12224
BG		148	1401
X	ΔX	0	12224
0	17,125	146	1256
0	17,25	0	12224
0	17,25	295	34017
0	17,25	0	12224
Média	SD	Média	SD
0		110	85
Erro	8,6	Erro	21
		MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
		110	40
Media Geral *			68
Erro Geral			28

Data: 18/08/2011		AMOSTRA D (277,05ml)	
		x	(media-x) ²
		146	1407
		0	760
		0	760
		0	760
		0	760
		0	760
		295	71522
		0	760
		0	760
		0	760
		0	760
		0	760
BG		0	760
X	ΔX	0	760
0	17,125	0	760
0	17,25	0	760
0	17,25	0	760
0	17,25	0	760
Média	SD	Média	SD
0		28	80
Erro	8,6	Erro	20
		MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
		25	39
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME		
25	72		
Erro corrigido volume	18		

*A média geral é a média obtida com os dados das duas medidas de uma mesma amostra.

Data: 19/08/2011		AMOSTRA E (250ml)	
		x	(media-x) ²
		0	86804
		146	22089
		0	86804
		295	0
		146	22089
		0	86804
		148	21499
		590	87246
		438	20556
		590	87246
		148	21499
		295	0
		292	7
		295	0
		738	196581
BG		593	89028
Média	SD* _t student	Média	SD
9	22	295	25
Erro	11	Erro	59
		MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
		260	74
Media Geral		192	
Erro Geral		46	

Data: 22/08/2011		AMOSTRA E (277ml)	
		x	(media-x) ²
		0	19096
		295	24590
		0	19096
		0	19096
		0	19096
		443	92911
		148	96
		590	204134
		0	19096
		0	19096
BG		0	19096
X	ΔX	0	19096
0	17,125	292	23658
0	17,25	0	19096
0	17,25	295	24590
0	17,25	148	96
Média	SD	Média	SD
0		138	190
Erro	8,6	Erro	47
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
125	172	125	55
Erro corrigido volume	43		

Data: 23/08/2011		AMOSTRA P (277ml)	
		x	(media-x) ²
		584	78820
		148	24102
		590	82225
		148	24102
		146	24727
		148	24102
		148	24102
		295	68
		438	18157
		0	91960
		148	24102
		148	24102
		730	182115
		738	189007
		148	24102
BG		295	68
Média	SD* _t student	Média	SD
9	22	303	236
Erro	11	Erro	59
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
274	213	239	70
Erro corrigido volume	53		

Data: 29/08/2011		AMOSTRA F (277ml)	
		x	(media-x) ²
		146	5614
		0	48809
		148	5318
		295	5486
		0	48809
		148	5318
		295	5486
		148	5318
		443	49315
		295	5486
		584	131820
		295	5486
		148	5318
		148	5318
			48809
BG			48809
Média	SD*t _{student}	Média	SD
17	45	221	160
Erro		Erro	
22		43	
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
199	144	131	97
Erro corrigido volume	36		

Data: 30/08/2011		AMOSTRA G (277ml)	
		x	(media-x) ²
		0	10277
		0	10277
		148	2174
		0	10277
		146	1991
		0	10277
		0	10277
		0	10277
		0	10277
		0	10277
		0	10277
		443	116708
		295	37491
		146	1991
		148	2174
		148	2174
		148	2174
BG		148	2174
Média	SD*t _{student}	Média	SD
17	26	101	129
Erro		Erro	
13		32	
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
91	116	23	59
Erro corrigido volume	29		

Data: 31/08/2011		AMOSTRA H (277ml)	
		x	(media-x) ²
		146	6520
		148	6847
		148	6847
		0	4257
		146	6520
		0	4257
		0	4257
		14	2626
		146	6520
		148	6847
BG		0	4257
X	ΔX	0	4257
0	17,12	0	4257
0	17,25	148	6847
0	17,25	0	4257
0	17,25	0	4257
Média	SD	Média	SD
0		65	74
Erro	8,6	Erro	19
MÉDIA CORREÇÃO	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
59	67	59	38
Erro corrigido vol	17		

Data: 01/09/2011		AMOSTRA L (277ml)	
		x	(media-x) ²
		0	6868
		0	6868
		148	4241
		0	6868
		146	3985
		0	6868
		0	6868
		0	6868
		0	6868
		146	3985
		0	6868
		0	6868
		443	129690
		0	6868
		0	6868
		148	4241
BG		295	44997
Média	$SD \cdot t_{student}$	Média	SD
9	22	82,88	132
Erro	11	Erro	33
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
75	119	41	53
Erro corrigido volume	30		

Data: 02/09/2011		AMOSTRA M (277ml)	
		x	(media-x) ²
		146	5550
		295	5550
		295	5550
		295	5550
		438	47306
		0	48620
		0	48620
		0	48620
		146	5550
		148	5256
		295	5550
		738	267806
		584	132132
		0	48620
		148	5256
		0	48620
BG		0	48620
Média	SD*t _{student}	Média	SD
9	22	220	221
Erro	11	Erro	55
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
199	200	165	67
Erro corrigido vol	50		

Data: 05/09/2011		AMOSTRA N (277ml)	
		x	(media-x) ²
		146	297
		0	16576
		0	16576
		0	16576
		146	297
		0	16576
		0	16576
		148	370
		0	16576
		148	370
		0	16576
BG		0	16576
X	ΔX	295	27639
0	17	292	26650
0	17,1	590	212751
0	17,1	295	27639
0	17,1	0	16576
Média	SD	Média	SD
0		128	169
Erro	8,6	Erro	42
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
116	152	116	51
Erro corrigido vol	38		

Data: 06/09/2011		AMOSTRA R (277ml)	
		x	(media-x) ²
		292	20916
		148	0
		148	0
		148	0
		0	21719
		0	21719
		148	0
		0	21719
		292	20916
		443	87394
		0	21719
		148	0
		0	21719
		295	21793
		148	0
		148	0
BG		148	0
Média	SD*t _{student}	Média	SD
17	26	147	131
Erro	13	Erro	33
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
133	119	64	60
Erro corrigido vol	30		

Data: 13/09/2011		AMOSTRA U (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		146	62
		148	97
		0	19078
		0	19078
		292	23677
		443	92949
		148	97
		0	19078
		0	19078
		0	19078
BG		295	24610
X	ΔX	148	97
0	17,125	146	62
0	17,25	148	97
0	17,25	148	97
0	17,25	148	97
Média	SD	Média	SD
0		138	126
Erro	8,6	Erro	31
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
125	113	125	45
Erro corrigido vol	28		

Data: 14/09/2011		AMOSTRA W (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		146	8626
		148	8258
		295	3150
		148	8258
		145	8812
		293	2929
		0	57061
		147	8441
		146	8626
		0	57061
BG		295	3150
X	ΔX	0	57061
0	17,125	584	119111
0	17,25	590	123289
0	17,25	295	3150
0	17,25	590	123289
Média	SD	Média	SD
0		239	200
Erro	8,6	Erro	50
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
215	180	215	57
Erro corrigido vol	45		

Data: 16/09/2011		AMOSTRA V (277ml)	
		x	(media-x) ²
		145	650
		147	756
		0	14280
		0	14280
		0	14280
		148	812
		0	14280
		148	812
		0	14280
		295	30800
		443	104652
		0	14280
		438	101442
		0	14280
		0	14280
BG		148	812
Média	$SD * t_{student}$	Média	SD
8,6	22	119	154
Erro	11	Erro	39
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
108	139	73	57

Erro corrigido vol	35	
--------------------	----	--

Data: 16/09/2011		AMOSTRA A (250 ml)	
		x	(media-x) ²
		146	6632
		0	4169
		148	6962
		0	4168
		0	4168
		0	4168
		148	6962
		0	4168
		0	4168
		0	4168
		0	4168
		148	6962
		0	4168
		0	4168
		0	4168
		295	53101
BG		148	6961
Média	SD* _t student	Média	SD
17	45	64,56	93
Erro	22	Erro	23
		MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
		-4	92

Data: 19/09/2011		AMOSTRA I (277ml)	
		x	(media-x) ²
		0	16593
		148	368
		295	27618
		0	16593
		145	262
		0	16593
		295	27618
		148	368
		145	262
		148	368
BG		295	27618
X	ΔX	147	331
0	17,125	0	16593
0	17,25	0	16593
0	17,25	295	27618
0	17,25	0	16593
Média	SD	Média	SD
0		129	119
Erro	8,6	Erro	30
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
116	107	116	44
Erro corrigido vol	27		

Data: 19/09/2011		AMOSTRA J (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		146	6622
		148	6951
		148	6951
		0	4176
		0	4176
		0	4176
		148	6951
		0	4176
		0	4176
		0	4176
		0	4176
		0	4176
		0	4176
		148	6951
		148	6951
BG		148	6951
Média	SD* _{tstudent}	Média	SD
9	22	65	76
Erro	11	Erro	19
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
58	68	24	48
Erro corrigido vol	17		

Data: 20/09/2011		AMOSTRA K (277ml)	
		x	(media-x) ²
		291	47361
		0	5384
		0	5384
		0	5384
		0	5384
		0	5384
		0	5384
		148	5569
		148	5569
		146	5274
		0	5384
BG		0	5384
X	ΔX	147	5421
0	17,125	146	5274
0	17,25	0	5384
0	17,25	148	5569
0	17,25	0	5384
Média	SD	Média	SD
0		73	92
Erro	8,6	Erro	23
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
66	83	66	40

Erro corrigido vol	21	
--------------------	----	--

Data: 20/09/2011		AMOSTRA O (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		0	7077
		148	4080
		0	7077
		0	7077
		0	7077
		18	4372
		0	7077
		0	7077
		0	7077
		295	44468
BG		295	44468
X	ΔX	0	7077
0	17,125	146	3828
0	17,25	148	4080
0	17,25	148	4080
0	17,25	148	4080
Média	SD	Média	SD
0		84	106
Erro	8,6	Erro	27
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
76	96	76	42
Erro corrigido vol	24		

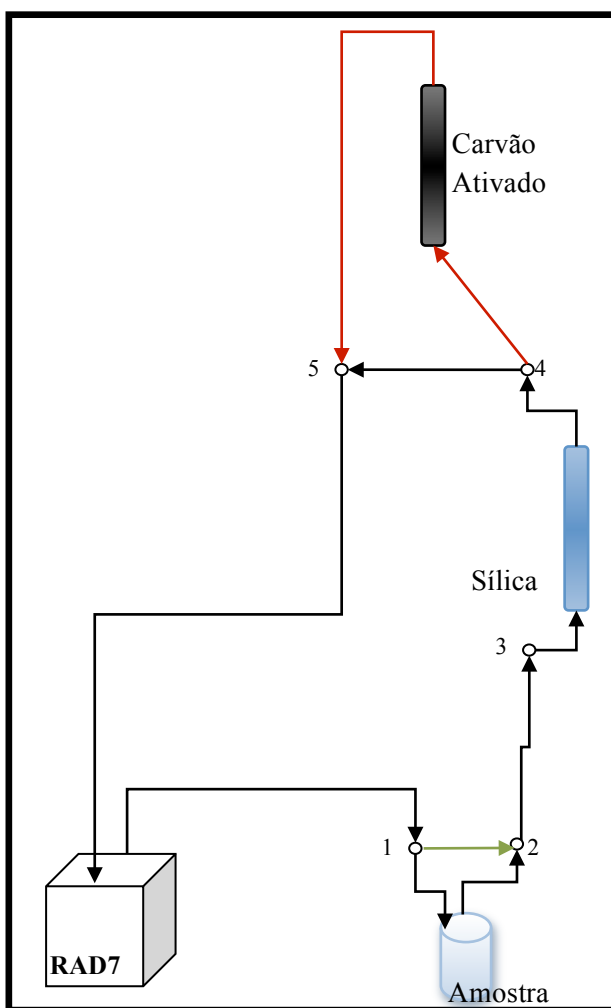
Data: 21/09/2011		AMOSTRA Q (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		146	291
		295	27577
		0	16625
		148	363
		0	16625
		148	363
		0	16625
		148	363
		0	16625
		443	98635
		0	16625
		295	27577
		0	16625
		0	16625
		293	26916
BG		147	326
Média	SD*t _{student}	Média	SD
9	22	129	141
Erro	11	Erro	35
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
116	127	82	55
Erro corrigido vol	32		

Data: 22/09/2011		AMOSTRA S (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		438,00	47089
		0,00	48841
		443,00	49284
		148,00	5329
		0	48841
		148	5329
		0	48841
		148	5329
		146	5625
		148	5329
BG		295	5476
X	ΔX	295	5476
0	17,125	146	5625
0	17,25	295	5476
0	17,25	443	49284
0	17,25	443	49284
Média	SD	Média	SD
0		221	161
Erro	8,6	Erro	40
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
199	146	199	50
Erro corrigido vol	36		

Data: 26/09/2011		AMOSTRA X (277 ml)	
		x	(media-x) ²
		292	16065
		0	27307
		295	16835
		295	16835
		146	370
		0	27307
		0	27307
		0	27307
		292	16065
		295	16835
BG		148	297
X	ΔX	443	77145
0	17,125	438	74392
0	17,25	0	27307
0	17,25	0	27307
0	17,25	0	27307
Média	SD	Média	SD
0		165	168
Erro	8,6	Erro	42
MÉDIA CORREÇÃO VOLUME	SD CORRIGIDO VOLUME	MÉDIA FINAL	ERRO FINAL
149	152	149	51
Erro corrigido vol	38		

APÊNDICE D – RESUMO DA METODOLOGIA SUGERIDA PARA MEDIDAS DE RÁDIO-226 EM ÁGUAS MINERAIS UTILIZANDO O RAD7

1. Montar o sistema de acordo com o esquema a seguir: As setas representam as mangueiras. Os pequenos círculos os conectores de 3 vias. As amostras devem estar em frascos de 250 mL e devem ter sido armazenadas por 30 dias livre de bolhas e em seu frasco completamente fechado.



2. Secar o sistema durante aproximadamente 12 horas fazendo com que o ar circule pela sílica e não atravesse o carvão ativado (seta preta entre conector 4 e 5) nem a amostra (seta verde).

PARA SECAR: (MENU –TEST – ENTER – PURGE – ENTER)

3. O sistema deve ser limpo por aproximadamente 1 hora até que o background esteja menor que 25 Bq/m³. Para isso, deve-se ligar o equipamento no modo PURGE fazendo com que o ar atravesse as mangueiras representadas pela cor verde e vermelha.

PARA LIMPAR: (MENU –TEST – ENTER – PURGE – ENTER)

PARA CONFERIR O BG: (MENU – TEST – ENTER– START – ENTER)

4. Secar o sistema até que a umidade seja igual ou menor que 5%. Parar isso, circule pela sílica e não atravesse o carvão ativado (seta preta entre conector 4 e 5) nem a amostra (seta verde).
PARA SECAR: (MENU –TEST – ENTER – PURGE – ENTER)

5. A medida é composta pela repetição do protocolo WAT250 por 4 vezes, secando o sistema entre as medidas.

PARA SELECIONAR PROTOCOLO WAT250: (MENU –SETUP – ENTER – PROTOCOL – ENTER - WAT250 – ENTER)

PARA INCIAR A MEDIDA: (MENU – TEST – ENTER– START – ENTER)

PARA SECAR ENTRE AS MEDIDAS: (MENU –TEST – ENTER – PURGE – ENTER)