

DOSE EFETIVA COMPROMETIDA DEVIDA AOS RADIONUCLÍDEOS ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra E ²²⁸Th CONTIDOS NOS ALIMENTOS DA DIETA DA POPULAÇÃO DO ESTADO DO RIO DE JANEIRO

José Marques Lopes

Tese de Doutorado apresentada ao Programa de Pós-graduação em Engenharia Nuclear, COPPE, da Universidade Federal do Rio de Janeiro, como parte dos requisitos necessários à obtenção do título de Doutor em Engenharia Nuclear.

Orientadores: Ademir Xavier da Silva Delson Braz

Rio de Janeiro Fevereiro de 2018

DOSE EFETIVA COMPROMETIDA DEVIDA AOS RADIONUCLÍDEOS ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra E ²²⁸Th CONTIDOS NOS ALIMENTOS DA DIETA DA POPULAÇÃO DO ESTADO DO RIO DE JANEIRO

José Marques Lopes

TESE SUBMETIDA AO CORPO DOCENTE DO INSTITUTO ALBERTO LUIZ COIMBRA DE PÓS-GRADUAÇÃO E PESQUISA DE ENGENHARIA (COPPE) DA UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO DE JANEIRO COMO PARTE DOS REQUISITOS NECESSÁRIOS PARA A OBTENÇÃO DO GRAU DE DOUTOR EM CIÊNCIAS EM ENGENHARIA NUCLEAR.

Examinada por:

Prof. Ademir Xavier da Silva, D.Sc.

Prof. Delson Braz, D.Sc.

Prof. Ricardo Tadeu Lopes, D.Sc.

Dr. César Marques Salgado, D.Sc.

Dr. Fernando Carlos Araújo Ribeiro, D.Sc.

RIO DE JANEIRO, RJ – BRASIL FEVEREIRO DE 2018 Lopes, José Marques

Dose Efetiva Comprometida Devida aos Radionuclídeos ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²²⁸Th Contidos nos Alimentos da Dieta da População do Estado do Rio de Janeiro / José Marques Lopes. – Rio de Janeiro: UFRJ/COPPE, 2018

XIV, 107 p.: il.; 29,7cm

Orientadores: Ademir Xavier da Silva

Delson Braz

Tese (Doutorado) – UFRJ/COPPE/Programa de Engenharia Nuclear, 2018.

Referência Bibliográfica: p. 99-107

1. Detecção de radiação gama. 2. HPGe. 3. Dose efetiva comprometida. 4. Ingestão anual de radionuclídeos. I. Silva, Ademir Xavier da *et al.* II. Universidade Federal do Rio de Janeiro, COPPE, Programa de Engenharia Nuclear. III. Título.

''Τετέλεσται "

Sexta palavra de Jesus Cristo na cruz, sobre a maior conquista que se tem notícia.

"Let your balalaika sing what my guitar wants to say" Klaus Meine, na música Wind of Change

DEDICATÓRIA

Aos meus pais, (in memoriam). Tenho certeza que estariam muito felizes se estivessem aqui, mesmo sem entender perfeitamente minha formação. Saudades eternas...

AGRADECIMENTOS

Gostaria de agradecer àquele que me escolheu antes que eu pudesse ter condições de conhecê-lo, que me deu forças frente às minhas dificuldades e que sempre está ao meu lado. Obrigado Senhor Deus!

Ao meu filho Davi, pois sua existência fez minha vida traçar novos objetivos.

À minha esposa que sempre me apoiou. A ela meus agradecimentos pelos momentos que participava de meus estudos, ouvia meus relatos, participava de algumas viagens a congressos, fazíamos coleta de amostras juntos, quase uma coautora. Pois assim podíamos ficar juntos. Te amo Silvânia.

Ao meu sogro e minha sogra. Eles que sempre intercederam ao Senhor por mim. Se algum sucesso há nisso, em parte devo a eles.

Aos discípulos de Cristo que congregam na Igreja Presbiteriana do Bairro Botafogo. Quantas lutas e dificuldades. Quantas vezes nos reunimos para reafirmar a convicção que somos nada, e que em Cristo temos um futuro melhor do que qualquer outra conquista aqui na Terra.

Aos meus irmãos, irmãs, cunhados e cunhadas que mesmo nas minhas ausências torciam pelo meu sucesso.

Aos funcionários do programa de Engenharia Nuclear (PEN), pela boa vontade que me prestaram durante o curso de doutoramento.

Aos professores do PEN que durante essa caminhada cooperaram para meu crescimento profissional.

Aos meus colegas do laboratório Artur, Mirta, Jardel, Rogério, Garcêz, Catherine, Pastrana, Alessandro, Alessander, Marzulo, Leandro. Quantas festas, almoços, churrascos, gargalhadas, piscinas.... Quantas ideias e opiniões que surgiram em momentos descontraídos e que colaboraram muito.

Aos meus orientadores Ademir Xavier da Silva e Delson Braz por terem confiado a mim a responsabilidade de desenvolver esse trabalho e pelas inúmeras colaborações.

Aos componentes da banca examinadora que se dispuseram avaliar esse trabalho. Obrigado por aceitar o convite e obrigado pelas contribuições.

Finalmente, agradeço ao CNPQ por financiar esse trabalho. Uma ajuda imprescindível!

Resumo da Tese apresentada à COPPE/UFRJ como parte dos requisitos necessários para a obtenção do grau de Doutor em Ciências (D.Sc.)

DOSE EFETIVA COMPROMETIDA DEVIDA AOS RADIONUCLÍDEOS ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra E ²²⁸Th CONTIDOS NOS ALIMENTOS DA DIETA DA POPULAÇÃO DO ESTADO DO RIO DE JANEIRO

José Marques Lopes

Fevereiro/2018

Orientadores: Ademir Xavier da Silva Delson Braz

Programa: Engenharia Nuclear

A dose efetiva anual devida ao consumo de radionuclídeos naturais ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²²⁸Th foi estimada a partir da espectrometria gama de alta resolução, dados de consumo alimentar para os habitantes do estado do Rio de Janeiro e coeficientes de dose publicados pela ICRP 119. As amostras analisadas foram de cereais, grãos, legumes, farinhas, líquidos e perecíveis. A calibração em energia foi feita utilizando fontes puntiformes certificadas e a eficiência de detecção para cada amostra foi obtida com o programa LabSOCS. Em todas as amostras, o ⁴⁰K foi o único elemento que apresentou valor de concentração específica acima da Atividade Mínima Detectável. No entanto, a maior contribuição para a dose efetiva comprometida foi devido aos radionuclídeos ²²⁶Ra e ²²⁸Ra, com 986 µSv.ano⁻¹ e 208 µSv.ano⁻¹, respectivamente. Os maiores contribuintes para dose foram os líquidos e os cereais, com respectivamente, 875 μ Sv.ano⁻¹ e 564 μ Sv.ano⁻¹. A dose efetiva anual total calculada foi de 1,36 mSv.ano⁻¹, quase 5 vezes acima do valor sugerido pela UNSCEAR. O principal contribuinte para este valor foi a concentração específica de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra no feijão e na água, visto que estes dois radionuclídeos tem os maiores fatores de conversão para dose efetiva dentre os radionuclídeos aqui estudados, e os dois alimentos apresentam as maiores médias de consumo anual.

Abstract of Thesis presented to COPPE/UFRJ as a partial fulfillment of the requirements for the degree of Doctor of Science (D.Sc.)

COMMITTED EFFECTIVE DOSE DUE TO RADIONUCLIDES ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra AND ²²⁸Th CONTAINED IN FOODS OF THE DIET OF THE RIO DE JANEIRO STATE POPULATION

José Marques Lopes

February/2018

Advisors: Ademir Xavier da Silva Delson Braz

Department: Nuclear Engineering

Committed effective dose due to the consumption of natural radionuclides ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra and ²²⁸Th was estimated from the high-resolution gamma spectrometry, food consumption data for the inhabitants of Rio de Janeiro state and dose coefficients published by the ICRP 119. The analyzed samples were cereals, grains, vegetables, flours, liquids and perishables. Energy calibration was done using certified point sources and the detection efficiency for each sample was obtained from LabSOCS software. In all samples, ⁴⁰K was the only element that presented specific concentration value above the MDA. However, the greatest contribution to the committed effective dose was due to ²²⁶Ra and ²²⁸Ra, with 986 µSv.y-1 and 208 µSv.y-1, respectively. The major contributors to the dose were liquids and cereals, with 875 µSv.y-1 and 564 µSv.y-1, respectively. The total committed effective dose was 1.36 mSv.y-1, almost 5fold higher than the value suggested by UNSCEAR. The main contributor to this value was the specific concentration of ²²⁶Ra and ²²⁸Ra in bean and water measured in this work, since these two radionuclides have the largest effective dose conversion factors among the radionuclides studied here, and the two foods present the highest annual consumption averages among all the foods studied.

Sumário

CAPÍTULO 1 -Introdução 1
1.1 Considerações gerais1
1.2 Revisão de literatura 4
1.3 Objetivo 14
1.4 Etapas
CAPÍTULO 2 - Fundamentação teórica16
2.1 Radioatividade natural
2.1.1 Séries radioativas: ²³⁵ U
2.1.2 Séries radioativas: ²³⁸ U 17
2.1.3 Séries radioativas: ²³² Th
2.1.4 Elemento ⁴⁰ K
2.2 Radioatividade Artificial
2.3 Radionuclídeos em alimentos 22
2.4 Efeitos dos radionuclídeos no organismo 25
2.5 Dose efetiva por ingestão 30
2.6 ICRP 119 31
26 юни 119
2.7 Espectrometria Gama
2.7 Espectrometria Gama
2.6 Ferrar 119 31 2.7 Espectrometria Gama
2.6 Ferral Trystantia Gama312.7 Espectrometria Gama322.7.1 Detectores semicondutores322.7.2 Equilíbrio secular362.7.3 Atividade específica37
2.6 feiti 1192.7 Espectrometria Gama
2.7 Espectrometria Gama
2.0 Iell TD2.7 Espectrometria Gama
2.7 Espectrometria Gama
2.7 Espectrometria Gama

Lista de Figuras

rigura il comportamento temporar do namero de publicações disponienizada pelas
editoras Reed-Elsevier e Springer com as palavras chaves "annual effective dose",
"committed effective dose" e "annual intake"
Figura 2. Série do Actínio (UMISEDO, 2007)17
Figura 3. Série do Urânio (UMISEDO, 2007)18
Figura 4. Série do Tório (UMISEDO, 2007)19
Figura 5. Esquema de decaimento do ⁴⁰ K 20
Figura 6. Carta de Radionuclídeos (IFGW, 2016)
Figura 7. Esquema de translocação e deposição de radionuclídeos em vegetais
(AQUINO, 2006)
Figura 8. Meios de incorporação dos radionuclídeos pelo homem (MELQUIADES,
2004)
Figura 9. Esquema da quebra molecular da água
Figura 10. Hélice do DNA e sua espiral de 2 nm. O dano causado por radicais livres em
torno de 4 nm (HALL, 2012)
Figura 11. Dewar e criostato
Figura 12. Equilíbrio secular (KAPLAN, 1978)
Figura 13. Espectrômetro utilizado com seus acessórios e componentes: a) observa-se o
dewar. b) a blindagem do detector. c) O multicanal DSA 1000. d) o espectro de uma
amostra
Figura 14. Visualização gráfica do Geometry Composer. Em (a) pode-se observar o
gabarito da geometria a ser modelada. Em (b) a matriz da caixa de diálogo onde devem
ser inseridas as dimensões do becker, como proposto em (a). Em (c) o resultado visual
das inserções feitas em (b) 44
Figura 15. Típica curva de eficiência para o HPGe obtida com o programa Genie 2k. 45
Figura 16. Em (a) o triturador manual e em (b) os porta-amostras utilizados no trabalho.
Figura 17. Processador utilizado na trituração de frutas, legumes e verduras 48
Figura 18. Ajuste em energia para espectrometria gama 52
Figura 19. Espectro e curva de eficiência gerados com o uso de fonte padrão produzida
pelo LNMRI – IRD/CNEN

Figura 20. Comparação das eficiências determinadas experimentalmente com uso de
fontes puntiformes e calculadas pelo LabSOCS
Figura 21. Diferença percentual entre os valores de eficiência calculados pelo LabSOCS
e determinados experimentalmente para fontes puntiformes
Figura 22. Comparação das eficiências para geometria volumétrica calculadas
experimentalmente e calculadas pelo LabSOCS 55
Figura 23. Diferença percentual entre o valor de eficiência calculado pelo LabSOCS e
determinado experimentalmente para geometria volumétrica55
Figura 24. Comparação das concentrações específicas de ⁴⁰ K para variedades de frutas.
Figura 25. Espectro em energia dos fótons obtido para beterraba (Gamma analyse) 76
Figura 26. Dose efetiva comprometida por categoria de alimentos (µSv.ano ⁻¹)91
Figura 27. Dose efetiva comprometida por radionuclídeo (µSv.ano ⁻¹)
Figura 28. Dose efetiva por radionuclídeo e categoria de alimentos (µSv.ano ⁻¹)
Figura 29. Contribuição percentual na dose efetiva comprometida em diferentes
categorias de alimentos devido aos radionuclídeos ⁴⁰ K, ^{226,228} Ra e ²²⁸ Th

Lista de Tabelas

Tabela 1. Elementos radioativos presentes no corpo humano (HEILBRON FILHO,
2004)
Tabela 2. Radionuclídeos e suas respectivas energias utilizados na calibração em
energia do sistema de detecção 42
Tabela 3. Pontos experimentais utilizado para ajuste quadrático em energia 51
Tabela 4. Diferença percentual entre os valores de eficiência calculado pelo LabSOCS e
determinado experimentalmente para padrão marinelli
Tabela 5. Valores de referência da UNSCEAR (2000) para grãos, em mBq.kg ⁻¹ 57
Tabela 6. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de cereais
(Bq.kg ⁻¹) *
Tabela 7. Valores de referência da UNSCEAR (2000) para frutas e raízes, em mBq.kg ⁻¹
Tabela 8. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de frutas
$(Bq.kg^{-1})$ *
Tabela 9. Comparação das concentrações específicas em Bq.kg ⁻¹ de 40 K com
VENTURINI (1999)
Tabela 10. Concentração específica em cascas de frutas (Bq.kg ⁻¹) *
Tabela 11. Diferença percentual entre a concentração específica de 40 K na casca e na
polpa71
Tabela 12. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de legumes
(Bq.kg ⁻¹) *
Tabela 13. Comparação da concentração específica de 40 K na polpa de legumes com
dados dispostos por VENTURINI (1999)
Tabela 14. Concentrações específicas para cascas dos legumes (Bq.kg ⁻¹) *
Tabela 15. Concentração específica de ¹³⁷ Cs em amostra da abóbora moranga
Tabela 16. Valores de referência da UNSCEAR (2000) para folhosas, em mBq.kg ⁻¹ 81
Tabela 17. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de verduras
(Bq.kg ⁻¹) *
Tabela 18. Concentração específica de radionuclídeos naturais em alimentos diversos
(Bq.kg ⁻¹) *
Tabela 19. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras líquidas
(Bq.kg ⁻¹) *

Tabela 20. Concentração específica de radionuclídeos naturais na amostra de carne	
(Bq.kg ⁻¹) *	87
Tabela 21. Valores de referência para dose efetiva comprometida (UNSCEAR, 2000)	88
Tabela 22. Valores de dose efetiva anual (μ Sv.ano ⁻¹)	89
Tabela 23. Coeficientes de dose segundo ICRP 119 (2012)	91

CAPÍTULO 1 Introdução

1.1 Considerações gerais

Os alimentos estão diretamente relacionados ao homem, visto que representam uma fonte essencial para a sua subsistência. Porém, é importante que esses alimentos contenham qualitativa e quantitativamente nutrientes capazes de garantir-lhe uma vida saudável. Face à industrialização crescente, a poluição ambiental vem aumentando expressivamente nas últimas décadas, podendo gerar efeitos adversos para a saúde do homem, por meio de sua dieta, via alimentos de origem vegetal e/ou animal.

A maior parte dos alimentos consumidos pelo homem é proveniente de solos agricultáveis sendo, portanto, o solo a principal fonte de suprimento de nutrientes para as plantas. Esses solos por si só podem não conter os nutrientes necessários ao desenvolvimento das plantas, além de conterem, naturalmente, elementos não essenciais às plantas, como radionuclídeos naturais e traços de metais pesados. Os teores dos radionuclídeos e metais pesados contidos nos solos vão depender de características físico-químicas e mineralógicas (SANTOS, 2002; ELE ABIAMA, 2012).

O conhecimento da radioatividade natural no homem e no seu ambiente é importante, uma vez que os radionuclídeos naturais são as principais fontes de exposição humana à radiação. Os nuclídeos radioativos presentes no ambiente natural entram no corpo principalmente por meio do consumo de alimentos e água (ASEFI, 2005).

Todos os radionuclídeos, sejam eles naturais ou não, tem uma importância radiobiológica significativa, pois há possibilidade de incorporação via cadeia alimentar e também por inalação de partículas suspensas no ar, constituindo uma rota direta para exposição externa (ASEFI, 2005).

A exposição pública à radiação devido aos elementos das cadeias naturais do ²³⁸U, ²³⁵U e ²³²Th deve-se ao fato da característica solúvel, principalmente ²³²Th, e sua capacidade migratória para reservatórios subterrâneos, contaminando vegetais que retiram seus nutrientes do solo. Especificamente, radionuclídeos de ocorrência natural pertencentes as cadeias do ²³⁸U e do ²³²Th contribuem aproximadamente com 30 a 60% da dose devido a radiação interna (ELE ABIAMA, 2012).

Em geral, a dose interna devido aos radionuclídeos naturais não é nociva, desde que a ingestão destes elementos não seja acima das recomendações (UNSCEAR, 2000). No entanto, há uma série de circunstâncias em que as concentrações de radionuclídeos naturais em água e alimentos excedem as concentrações de referência e os limites sugeridos. Portanto, a verificação dos níveis de concentração de radionuclídeos naturais e artificiais nos alimentos fornece um parâmetro de referência em casos de anormalidades e/ou contaminação do solo, por exemplo (SCHEIBEL, 2007). A concentração de radionuclídeos de ocorrência natural no ambiente pode ser utilizada não apenas como referência, mas também como base para avaliar o impacto causado por atividades não-nucleares (ASEFI, 2005).

As organizações internacionais reconheceram a necessidade da avaliação das doses de radiação recebidas pela população (UNSCEAR, 2000). Nesse sentido, a geração de um banco de dados de concentração natural e antropogênica de radioisótopos nos alimentos representa uma questão importante. Entretanto, no Brasil, foram realizados poucos estudos de radioatividade natural em alimentos. As publicações existentes, em geral, apresentam estudos para uma variedade de alimentos com características semelhantes ou espécies parecidas, ou dados para uma região de anomalia radiométrica (CARDOSO, 2012; SCHEIBEL, 2007; LAURIA, 2002; VENTURINI, 1999).

Foi realizada uma busca bibliográfica na base de dados de duas das três maiores editoras de literatura médica e científica do mundo, a saber Reed-Elsevier e Springer (LARIVIÈRE, *et al.*, 2015). Esse levantamento foi realizado para verificar a evolução das publicações ligadas a *dose devido a ingestão* no tempo. Para tanto, foi realizada uma busca bibliográfica com as palavras chaves "annual effective dose", "committed effective dose" e "annual intake". Os resultados foram organizados por ano de publicação. Observou-se que de 1997 a 2016 foram publicados 641 trabalhos, uma média de 32 publicações por ano. Os valores da evolução no tempo destas publicações podem ser visualizados na Figura 1.

No período de 1997 a 2016 foram identificadas três fases distintas no comportamento do número das publicações. O primeiro período compreende o intervalo de 1997 a 2001, com um decréscimo de 33 para 12 publicações. No ano de 2002 a 2009 houve uma ligeira flutuação, mas sem qualquer alteração significativa no número de publicações. A partir de 2011, outro cenário foi construído com um crescente número de publicações após a tragédia de Fukushima. A estimativa é de que no fim do ano de

2017 esse comportamento tenha se mantido, visto que até metade do ano citado, 23 publicações com as palavras chave "*annual effective dose*", "*committed effective dose*" e "*annual intake*" já foram disponibilizadas pelas editoras.



Figura 1. Comportamento temporal do número de publicações disponibilizada pelas editoras Reed-Elsevier e Springer com as palavras chaves "annual effective dose", "committed effective dose" e "annual intake".

Apesar dos dados apresentados acima, o estado do Rio de Janeiro aparece em apenas duas situações: em um trabalho que estimou a dose efetiva comprometida devido a ingestão de radionuclídeos contidos em vegetais (SANTOS, 2002) e em um segundo trabalho, que calculou a dose efetiva comprometida devido o consumo de águas subterrâneas na Região dos Lagos (ALMEIDA, 2004). Apesar de possuírem um banco de informações consistentes e indispensáveis, estes trabalhos não conseguem suprir a demanda necessária para ter uma avaliação substancial da dose comprometida para o estado do Rio de Janeiro.

O Brasil é um país de dimensões continentais, com grande variedade e tipos de solos, de níveis variados de radioatividade natural, de diferenças no gerenciamento das culturas e de diversidade nas dietas populacionais. Além disso, a avaliação da exposição a radionuclídeos naturais por meio da ingestão é dificultada pelo complexo sistema de distribuição de alimentos e diferentes padrões de consumo. Esta situação exige o estabelecimento de metodologias específicas para o levantamento de informações que

possibilitem traçar uma linha de base para a avaliação dos níveis de ingestão de radionuclídeos naturais (SANTOS, 2002).

Os alimentos consumidos no estado do Rio de Janeiro vêm de toda parte do Brasil e do exterior. Portanto, as características radiométricas dos alimentos são as mais variadas, devido às características do solo onde são cultivadas as frutas, legumes, verduras, cereais, etc. Essa característica variada da composição radiométrica dos alimentos torna importante o conhecimento da radioatividade natural que o homem está sujeito e o conhecimento da dose efetiva devido ao consumo diário de alimentos, pois a ocorrência natural de radionuclídeos no meio ambiente é a maior fonte de exposição para o ser-humano, sendo a alimentação e o consumo diário de água, a principal via de acesso de radionuclídeos para corpo (UNSCEAR, 2000).

Portanto, este trabalho visa calcular a dose efetiva para os habitantes do estado do Rio de Janeiro devido ao consumo de alimentos que compõem a dieta desta localidade. O diferencial do presente trabalho está relacionado às categorias de alimentos que foram analisadas. Além do uso do programa LabSOCS para o cálculo da eficiência de detecção permitiu analisar alimentos de diferentes características físicas, como densidade, volume, massa, entre outras. Esse fato contribuiu para que fosse possível calcular a dose efetiva devido a uma grande variedade de alimentos, inclusive alimentos industrializados, para o qual não há registros de concentração específica ou registros de dose efetiva na literatura para o estado do Rio de Janeiro. Outro diferencial do presente trabalho foi o uso de dados atualizados do IBGE para o consumo alimentar pessoal, pois a qualidade e quantidade de alimentos consumidos dependem diretamente da característica econômica da população.

1.2 Revisão de literatura

Nos últimos anos, publicações de toda a parte do mundo tem divulgado valores de concentração específica de radionuclídeos em alimentos. Outros trabalhos dão conta da dose efetiva para determinado grupo alimentício. A seguir são apresentados alguns dos mais recentes trabalhos na área de espectrometria gama em alimentos, assunto diretamente relacionado ao estudo do presente trabalho.

PIETRZAK-FILS *et al.* (1997-1) avaliaram a concentração de ²³⁸U, ²³⁴U, ²²⁶Ra, ²³⁰Th, ²³²Th e ²²⁸Th contidos em alimentos e água ingeridos pelos habitantes de

Walbrzych, Polônia, uma região que aumentou o nível de ²²⁶Ra devido ao processo de extração de uranio naquelas proximidades. As amostras de vegetais, frutas, perecíveis e água passaram por um tratamento químico para contagem alfa. A dose efetiva anual para os radionuclídeos naturais estudados foi de 5,58 μ Sv, dos quais 74% é devido a ingestão de ²²⁶Ra. Esta dose efetiva comprometida é de apenas 10% da dose devido ao ²¹⁰Po, que foi estimada em 54 μ Sv.ano⁻¹ (PIETRZAK-FILS, 1997-2).

PIETRZAK-FILS *et al.* (1997-2) estimaram a dose efetiva anual a partir da concentração específica do ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb e ²¹⁰Po em alimentos comuns à população do norte e nordeste da Polônia. As amostras passaram por um tratamento químico antes de serem analisadas em um espectrômetro alfa. Os autores puderam concluir que a ingestão de ²²⁶Ra no norte e nordeste da Polônia é, aproximadamente, 17% maior que a média do país. Os valores de dose efetiva anual foram estimados em 45 μ Sv para ²¹⁰Pb, 8,8 μ Sv para ²¹⁰Po e 3,8 μ Sv para ²²⁶Ra.

VENTURINI el al. (1999) analisaram a concentração específica dos radionuclídeos 40 K, 228 Ra, 226 Ra e 137 Cs em amostras de alimentos da cidade de São Paulo e posteriormente estimaram a dose efetiva comprometida devido a ingestão destes radionuclídeos. Foram 38 amostras, entre frutas, vegetais, cereais e carnes. Depois de calcinadas, as amostras foram contadas em um detector HPGe. A dose efetiva anual devido aos radionuclídeos 40 K, 228 Ra, 226 Ra e 137 Cs foi estimada em 87,4 µSv, 36,7 µSv, 4,9 µSv, 0,04 µSv, respectivamente.

AVADHANI *et al.* (2001) fizeram um estudo detalhado da concentração específica em alimentos e da ingestão de ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb no estado de Goa, situado na costa oeste da Índia. A motivação dos autores basiou-se na possibilidade de futuramente avaliar os impactos de uma possível usina nuclear e uma indústria mineradora atuante na região. A concentração específica foi obtida em um detector alfa e os coeficientes de dose utilizados para cálculo da dose efetiva foram aqueles da publicação 72 da ICRP (1995). Os autores concluíram que os vegetais folhosos tiveram os maiores valores de concentração específica, e os alimentos marinhos apresentaram as maiores concentrações de ²¹⁰Po. A dose efetiva anual devido a ingestão de ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb, foi estimada em 107,3 µSv e 61,8 µSv para não-vegetariano e vegetariano, respectivamente.

PIETRZAK-FLIS *et al.* (2001) decidiram estimar a quantidade ingerida de ²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th e de ²²⁶Ra pelos habitantes da região central da Polônia. O motivo principal é a característica do solo, que tem uma concentração de atividade acima da média mundial. Várias amostras de grãos, legumes, verduras, bebidas e frutas, totalizando 30 itens, foram analisadas. Os resultados da concentração específica foram obtidos por separação química somado à contagem alfa e beta total. Os autores estimaram a dose efetiva comprometida anual em 5,95 μ Sv, cujo maior contribuinte foi o ²²⁶Ra.

LAURIA *et al.* (2002) obteveram as concentrações de ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²²⁸Ra e ²³²Th nos principais alimentos consumidos pela população de Buena, Rio de janeiro. Na região encontra-se a mais importante ocorrência brasileira de monazita. As amostras foram calcinadas e, após o processo de separação química, as amostras foram contadas em um detector alfa, beta, ou analisadas por espectrofotometria, dependendo do radionuclídeo. Os autores observaram que os alimentos procedentes de Buena tem teores de ²²⁶Ra,²²⁸Ra e ²¹⁰Pb de 5 a 13 vezes maiores aos alimentos consumidos na cidade do Rio de Janeiro. A dose devido a ingestão em Buena é mais de 3 vezes a dose devido à ingestão na capital.

MISDAQ *et al.* (2002) calcularam a concentração de ²³⁸U e ²³²Th em diferentes cereais, frutas e vegetais usando um método baseado no cálculo da eficiência de detecção para partículas alfa. Usando os resultados de concentração específica, a dose efetiva devido a ²³⁸U e ²³²Th foi estimada para habitantes do Marrocos. Os autores concluíram que os cereais são os grandes contribuintes para ingestão interna, com cerca de 73% para ²³⁸U e 76% para ²³²Th. No entanto, essa estimativa depende diretamente do solo da região de cultivo, principalmente devido à adição de fertilizantes. A dose efetiva comprometida anual teve seu valor estimado em 10 μ Sv.

SANTOS *et al.* (2002a) determinaram a concentração de radionuclídeos de ocorrência natural ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra and ²¹⁰Pb em vegetais e produtos derivados mais consumidos pelos habitantes adultos do estado do Rio de Janeiro. Foram analisadas um total de 88 amostras e os espectros foram obtidos por contagem alfa e beta total. Dentre os resultados obtidos, pôde-se perceber que o ²²⁸Ra e o ²¹⁰Pb são os radionuclídeos que mais contribuem para dose efetiva comprometida. Dentre os vegetais os maiores contribuintes na dose efetiva comprometida são feijão, farinha de trigo, arroz, mandioca, cenoura, tomate e batata. Os autores concluíram que a ingestão diária está em acordo com os valores da ingestão diária referenciada pela UNSCEAR (2000).

SANTOS *et al.* (2002b) determinaram a concentração específica de radionuclídeos de ocorrência natural ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb em 88 amostras de vegetais e produtos derivados, comumente consumidos peala população da cidade do

Rio de Janeiro. A motivação foi estimar a dose efetiva comprometida devido a ingestão destes radionuclídeos. As amostras foram calcinadas e, após o processo de separação química, as amostras foram contadas em um detector alfa, beta, ou por espectrofotometria, dependendo do radionuclídeo. Os autores concluíram que, entre os radionuclídeos analisados, ²²⁸Ra e ²¹⁰Pb são os maiores contribuintes para ingestão interna. Também informam que 70% da ingestão de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra advém do consumo de vegetais, enquanto que a dose devido a ingestão do ²¹⁰Pb, em sua maior parte, é devido a água consumida.

BADRAN *et al.* (2003) aferiram a concentração específica de ¹³⁷Cs and ⁴⁰K em alguns alimentos consumidos no Egito. O principal objetivo foi criar um banco de dados para futuras avaliações locais depois do funcionamento de uma usina nuclear, além de obter respostas sobre uma possível contaminação radioativa de alimentos que são importados para região. Os detectores obtidos para levantamento do espectro foram dois HPGe, um com 10% de eficiência e um com 50% de eficiência. O tempo de contagem foi aquele que garantiu 95% de significância estatística, em média 10h e 5h para o detector de 10% e 50%, respectivamente. Os autores concluíram que os níveis de ⁴⁰K estão dentro da faixa reportada em diferentes partes do mundo. A concentração de ¹³⁷Cs encontrada nas amostras indicaram que não há contaminação significativa. Contudo, ervilhas e verduras apresentaram as maiores concentrações específicas para o radionuclídeo artificial citado. A média para concentração de atividade de ¹³⁷Cs e⁴⁰K foram de (0,85 ± 1,43) Bq.kg⁻¹ e (95 ± 71) Bq.kg⁻¹, respectivamente.

HERNÁNDEZ *et al.* (2004) determinaram a concentração média e a dose efetiva devido à ingestão anual dos radionuclídeos ²³⁸U, ²²⁸Ra, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs e ⁴⁰K em 26 tipos diferentes de alimentos comumente consumidos na ilha de Tenerife, Espanha. A ideia dos autores foi estabelecer bases para um controle radiométrico e gerar um banco de dados que irá permitir um estudo de transferência e acumulação de radionuclídeos na ilha. As amostras foram calcinadas e depois foram analisadas em um detector HPGe por um período de 170.000 até 255.000 s. Os autores concluiram que a concentração de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra é maior que a concentração medida em outros países. A dose efetiva comprometida calculada para ilha foi de 362 μ Sv. O ⁴⁰K foi o maior contribuinte e a batata o alimento que mais contribui para dose efetiva anual.

BAN-NAI *et al.* (2004) determinaram a concentração de ¹³⁷Cs e ⁴⁰K em amostras de cogumelos comercializados no Japão. Cogumelos são conhecidos pela facilidade de acumular césio. Portanto, a partir dos dados do consumo diário de

cogumelos, os autores estimaram a dose efetiva por ingestão. Depois de ressecadas, os espectros das amostras foram obtidos em um detector HPGe, por um período de contagem de 24 - 72 horas. As médias das concentrações específicas foram 0,56 Bq.kg⁻¹ e 92 Bq.kg⁻¹ para o ¹³⁷Cs e ⁴⁰K respectivamente. A dose anual devido a ingestão foi de ¹³⁷Cs foi estimada em 40 nSv. Os autores concluíram que as novas técnicas de cultivo ajudaram a diminuir pela metade a dose efetiva anual devido à ingestão de cogumelos no Japão.

AL-MASRI *et al.* (2004) participaram do Programa Nacional de Monitoramento Alimentar, onde determinaram a concentração de radionuclídeos de ocorrência natural, a saber ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb, ⁴⁰K e ²³⁴⁺²³⁸U, em alimentos na dieta síria e, posteriormente, a ingestão diária destes radionuclídeos. Além disso, os resultados deste estudo serviram para avaliar a dose efetiva comprometida para a população. Os valores de concentração específica foram obtidos pelo processo radioquímico (²¹⁰Po e ²¹⁰Pb), por espectrometria gama (⁴⁰K) e por fluorimetria (²³⁴⁺²³⁸U). Os autores verificaram que a dose mais elevada se deve principalmente ao consumo de trigo: 416 µSv.ano⁻¹ e 230 µSv.ano⁻¹ para ²¹⁰Po e ²¹⁰Pb, respectivamente. Concluiu-se que a maior parte da concentração específica dos radionuclídeos estudados coincidiu com valores reportados a nível mundial. Em alguns alimentos foram encontrados altos níveis de ²¹⁰Po, como vegetais folhosos e peixes.

SKWARZEC *et al.* (2004) determinaram a concentração específica do ²³⁸U, ²³⁴U e ²¹⁰Po em amostras de cerveja comumente consumidas na Polônia. A motivação dos autores foi obter informações para garantir que a ingestão destes radionuclídeos estão dentro de limites seguros para população. Após o processo de separação química, as amostras foram contadas em um detector alfa. Os resultados revelaram que a concentração média de ²³⁸U, ²³⁴U e ²¹⁰Po foi de 4,63 mBq.dm⁻³, 4,11 mBq.dm⁻³ e 4,94 mBq.dm⁻³, respectivamente. A dose anual devido a ingestão de cerveja foi de 0,4 µSv, valor próximo ao valor de dose efetiva anual devido a ingestão de água.

ASEFI *et al.* (2005) determinaram a concentração específica de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra nos alimentos da cidade de Ramsar com finalidade de calcular a dose devido à ingestão destes radionuclídeos. As 33 amostras foram escolhidas de acordo com os dados do centro de distribuição de alimentos daquela cidade. Depois de ressecadas, os espectros das amostras foram obtidos em um detector HPGe com 40% de eficiência. O tempo de contagem foi de 250.000 s. As maiores concentrações específicas de ²²⁶Ra,²²⁸Ra foram devido às amostras de chá, enquanto as menores concentrações de ²²⁸Ra foi devido às amostras de ervilhas, queijo, feijão e beterraba. A maior estimativa de dose efetiva anual

para ingestão de ²²⁶Ra foi de 19,2 mSv, devido ao consumo de arroz. A maior estimativa de dose efetiva anual para ingestão de ²²⁸Ra foi de e 0,71 mSv, devido ao consumo de carne.

AMARAL *et al.* (2005) determinaram a concentração de uranio natural e ²²⁶Ra em alimentos cultivados em uma região de Pernambuco, Brasil, rica em fosfato. O objetivo foi calcular o nível de ingestão destes elementos. As amostras foram calcinadas e posteriormente passaram por um processo de separação química para aferir a concentração dos radionuclídeos. Os autores obtiveram média de concentração de urânio em 46 mBq.kg⁻¹ e média de concentração de ²²⁶Ra em 358 mBq.kg⁻¹. A ingestão anual destes radionuclídeos foi de 7,45 Bq para o urânio e 69,3 Bq para ²²⁶Ra.

BIKIT *et al.* (2006) integravam um laboratório de monitoramento ambiental da cidade de Novi Sad, Sérvia, quando analisaram 86 amostras de alimentos, com finalidades de obter as concentrações específicas e a dose efetiva comprometida devido aos radionuclídeos ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K. Para obter os espectros foi utilizado um detector HPGe com 36% de eficiência e o tempo de contagem foi de 80.000 s. Os resultados obtidos pelos autores mostraram que os níveis radiométricos obtidos nas amostras de alimentos da cidade são muito baixos. A dose efetiva comprometida, calculada para ⁴⁰K, não superou 194 μ Sv.ano⁻¹ Os autores puderam notar que a concentração específica do ¹³⁷Cs nos alimentos foi 200 vezes menor quando comparado com resultados do ano de 1988, dois anos após o desastre de Chernobyl.

HOSSEINI *et al.* (2006) investigaram a concentração de alguns radionuclídeos de meia-vida longa (⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²³²Th e ¹³⁷Cs) em 26 alimentos importados consumidos no Iran. A motivação foi criar um banco de dados para, posteriormente, calcular a dose devido a ingestão destes alimentos. As amostras foram preparadas e posteriormente foram contadas por 250.000 s em um detector HPGe de 40% de eficiência. Os autores puderam concluir que a concentração específica de ⁴⁰K e ¹³⁷Cs estão na mesma ordem de grandeza da concentração mensurada em outros países. Diferentemente do ²³²Th, cuja concentração específica é maior que aqueles. Já o ²²⁶Ra, apresentou valores maiores em alguns casos.

SCHEIBEL (2007) analisou os níveis de radioatividade em produtos para exportação produzidos no Estado do Paraná. Foi utilizado um detector HPGe de 10% de eficiência relativa. A geometria utilizada foi um marinelli. O autor utilizou um padrão de ¹⁵²Eu para cálculo de eficiência e coeficientes de auto atenuação encontrados na literatura. Dentre os resultados encontrados o autor pôde perceber uma variação da

concentração de ⁴⁰K em diferentes estágios de preparação da soja, isto é, maior concentração no estágio semente que no estágio óleo. A concentração específica do ¹³⁷Cs ficou abaixo do Limite Mínimo de Detecção (LMD) em todas as medidas.

JIBIRI et al (2007) quantificaram a concentração específica de ⁴⁰K, ²³⁸U and ²³²Th em solos e alimentos na região de Jos-Plateau, Nigéria. A intenção dos autores foi determinar a concentração específica em diferentes culturas agrícolas e estimar a dose efetiva comprometida para indivíduos locais. Os espectros das amostras foram obtidos em um detector NaI(Tl) com dimensões de 76 mm x 76 mm. O tempo de contagem foi de 36.000 s. Os autores concluíram que, dentre os radionuclídeos de interesse, a concentração específica do ⁴⁰K foi a maior em todas as amostras analisadas. Também puderam afirmar que os tubérculos são os que mais contribuem para dose efetiva comprometida, pois são o principal constituinte alimentar da região. A dose externa devido à radioatividade do solo e a dose devido à ingestão de alimentos foram consideradas relativamente altas, no entanto suficientemente baixa para uma intervenção protetiva.

SANTOS *et al.* (2008) determinaram a concentração específica de ⁴⁰K em alimentos produzidos na região Centro-Oeste do Brasil com intenção de estabelecer um banco de dados radiológico e calcular a dose do radionuclídeo devido a ingestão diária da população. As amostras de grãos, raízes, folhas e frutas passaram por um processo de secagem para obter cinza branca. Os espectros foram obtidos em um detector HPGe de 25% de eficiência relativa, com um tempo de contagem de 15 horas. Os autores concluíram que os níveis de ⁴⁰K encontrado em suas medidas são maiores que alguns valores da literatura. Essa característica foi atribuída ao uso de fertilizantes para suprir as carências do solo. O feijão foi o maior contribuinte para dose efetiva anual, com cerca de 80% do total da dose entregue.

MIN-SEOK CHOI *et al.* (2008) estudaram a ingestão diária dos radionuclídeos naturais ²³²Th, ²²⁸Th, ²²⁸Ra, ²³⁰Th, ²²⁶Ra e ⁴⁰K presentes nos alimentos típicos da Coréia, como leite, carne, grãos, vegetais, frutas, peixes, marisco e algas marinhas. Também estimaram a dose efetiva anual devido à ingestão destes radionuclídeos. Para aferir a concentração específica do Th, foi feita a separação química para posteriormente utilizar a contagem alfa. Para aferir a concentração específica dos outros radionuclídeos foi utilizado um detector HPGe com eficiência relativa de 33%, com um tempo de contagem de 200.000 s. De maneira geral, o ⁴⁰K foi classificado como o radionuclídeo

para um ano para os radionuclídeos 40 K, 232 Th, 228 Th, 230 Th, 228 Ra e 226 Ra foi estimado em 101 µSv, 0,10 µSv, 0,35 µSv, 0,11 µSv, 6,79 µSv e 1,81 µSv, respectivamente.

OTA *et al.* (2009) calcularam a dose efetiva comprometida para população japonesa devido a ingestão dos radionuclídeos ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs, ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po e ²³⁹⁺²⁴⁰Pu presentes em 137 amostras de alimentos comumente consumidos. A concentração específica do ⁹⁰Sr, do ¹³⁷Cs e do ²³⁹⁺²⁴⁰Pu foi obtida por análise radioquímica. A concentração específica do ²³²Th e do ²³⁸U foi obtida por espectrometria de massa. A concentração específica do ²²⁶Ra foi obtida por espectrometria de cintilação líquida. Depois da separação química, a concentração específica do ²¹⁰Pb e do ²¹⁰Po foi obtida por espectrometria alfa. Os autores estimaram a dose efetiva devido a ingestão de radionuclídeos em 0,8 mSv, maior que o valor sugerido de dose efetiva comprometida (UNSCEAR, 2000). Os autores concluíram que o maior contribuinte para dose anual são os alimentos marinhos com 80%, e o radionuclídeo que mais contribuiu foi o ²¹⁰Po, com 91% da dose anual.

LAURIA *et al.* (2009) avaliaram as diferenças nos níveis de ²³⁸U, ²²⁶Ra e ²²⁸Ra em vegetais que são cultivados sob diferentes condições: convencional, orgânico e hidropônico. O objetivo foi investigar os fatores que afetam a absorção dos radioisótopos de urânio e rádio pelos vegetais. As amostras passaram por um tratamento químico antes de serem analisadas em um detector HPGe e por um detector de contagem alfa e beta total. Os autores concluíram que não houve diferenças significativas nas concentrações de rádio e uranio nos vegetais cultivados nos moldes convencional e orgânico. No entanto, percebeu-se que alface cultivada no sistema hidropônico apresentou as menores concentrações de radionuclídeos. Os autores puderam concluir também que os fatores de transferência estão de acordo com os valores disponíveis na literatura.

CEVIK *et al.* (2009) analisaram amostras da castanha cultivadas em uma região ao norte da Turquia. A intenção era determinar os níveis de radioatividade e de metais pesados em avelãs. A motivação foi a crescente urbanização local que tem poluído a região, além dos resultados que confirmaram o crescente aumento da concentração de metais pesados nos musgos da região. O espectro foi obtido em um detector HPGe de 20% de eficiência relativa. A concentração de metais pesados foi feita utilizando a técnica de fluorescência de raio X. Os autores observaram que a dose devido a ingestão de ²²⁶Ra, ²³²Th, ⁴⁰K e ¹³⁷Cs, está abaixo da média anual. A ingestão de metais pesados AROGUNJO *et al.* (2009) analisaram a concentração específica de ²³⁸U e ²³²Th em amostras de alimentos produzidos em uma área de exploração mineral. Depois de seladas as amostras ficaram em repouso para atingirem o equilíbrio secular e posteriormente foi utilizado um detector HPGe para obter os espectros. Os autores observaram uma alta concentração específica de ²³⁸U e ²³²Th em suas amostras quando comparadas com os valores de referência da UNSCEAR (2000). Por outro lado, os valores da concentração específica destes radionuclídeos na água analisada estão de acordo com os valores de referência da UNSCEAR (2000) e menores que aqueles encontrados na literatura.

DESIMONI *et al.* (2009) analisaram amostras de leite coletadas por oito anos nas províncias de Buenos Aires, Santa Fé, La Pampa, Córdoba, Tucumán, Mendoza na Argentina, além de amostras coletadas no Uruguai e Chile. As amostras foram secadas a oitenta graus Celsius para obter resíduo seco. As medidas foram realizadas em um detector HPGe com tempo de contagem de uma semana. As medidas das concentrações específicas dos elementos que compõe as cadeias do ²³⁸U e ²³²Th ficaram abaixo do limite mínimo de detecção. O valor da concentração específica do ⁴⁰K ficou na faixa de 50-76 Bq.L⁻¹, intervalo próximo aos valores recomendados pela UNSCEAR e ICRP e similar aos valores observados na literatura.

TUFAIL *et al.* (2010) mediram a transferência de radionuclídeo de um solo altamente fertilizado para grãos de trigo cultivados em Faisalabad, Pakistan. Posteriormente estimaram a dose efetiva comprometida devido à ingestão desses grãos. O detector utilizado foi um HPGe. O valor médio da concentração específica nos grãos de soja para ⁴⁰K, ²²⁶Ra e ²³²Th foi aferido em 123 Bq.kg⁻¹, 1,4 Bq.kg⁻¹ e 1,3 Bq.kg⁻¹, respectivamente. O valor do fator de transferência medido foi de (0,118 ± 0,021) para o ⁴⁰K, (0,022 ± 0,004) para o ²²⁶Ra e (0,036 ± 0,007) para ²³²Th. A dose efetiva anual foi estimada em 217 µSv, onde 53%, 27% e 20% é devido aos radionuclídeos ⁴⁰K, ²²⁶Ra e ²³²Th, respectivamente.

SHANTHI *et al.* (2010), calcularam a ingestão anual e a dose efetiva comprometida devido a ingestão dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²⁸Th e ⁴⁰K presentes nos alimentos típicos da região sudoeste da India, como peixe, leite, arroz, tapioca, banana, manga, guava, tomate, entre outros. O local é considerado uma região com uma radiação de fundo acima da média mundial. Portanto, As amostras foram calcinadas e depois contadas por 5000 s em um detector NaI(Tl). Os autores concluíram que o consumo diário de ⁴⁰K foi o maior entre os radionuclídeos, mas foi menor que os

valores de consumo diário de outros países e menor que o valor referenciado pela ICRP. A dose devido a ingestão diária foi estimada em 4,92 μ Sv e a dose efetiva devido a ingestão foi estimada em 1,79 mSv.a⁻¹.

ELE ABIAMA *et al.* (2012) determinaram a concentração específica dos radionuclídeos ^{226,228}Ra e ⁴⁰K em alguns vegetais mais consumidos pela população do sudeste de Camarões, uma região com alta radiação de fundo. A proposta foi garantir a segurança alimentar e que a dose efetiva por ingestão está dentro dos limites estabelecidos. Um total de 25 amostras foram coletadas e depois de preparadas; os espectros foram obtidos em um detector HPGe com 30% de eficiência, por 86.000 s. A concentração de atividade média para o ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ⁴⁰K foi 2,3 Bq.kg⁻¹, 1,5 Bq.kg⁻¹ e 140,4 Bq.kg⁻¹, respectivamente. A dose efetiva comprometida anual foi estimada em 0,7 mSv. Os autores puderam observar que a concentração específica dos radionuclídeos ^{226,228}Ra e ⁴⁰K são maiores que os valores sugeridos pela UNSCEAR (2000). Além disso, puderam notar que o ²²⁸Ra é o radionuclídeo que mais contribuiu com a dose efetiva comprometida.

EL SAMAD *et al.* (2012) divulgaram resultados de um programa nacional de monitoramento libanês que foi feito nos anos de 2009 e 2010. Dentre as áreas de interesse, como meio atmosférico, meio aquático e terrestre, também fez parte a análise da concentração de radionuclídeos em alimentos, com fins de obter um banco de informações sobre concentrações radiométricas e informações sobre exposição pública. As informações sobre concentração específica foram obtidas por separação química e/ou espectrometria gama. A concentração específica de ¹³⁷Cs ficou abaixo do MDA para todas as amostras de alimentos. O radionuclídeo ⁴⁰K apresentou-se mensurável em 90% das amostras de alimentos e o valor de dose efetiva comprometida foi de 0,3 mSv.ano⁻¹.

AVWIRI *et al.* (2013) determinaram os níveis de radionuclídeos de ocorrência natural em alguns vegetais e frutas comumente consumidos em uma região produtora de óleo e gás: Niger Delta, Nigéria. Um total de 31 amostras foram analisadas, seus espectros obtidos em um detector HPGe e o tempo de contagem foi de 36.000 s. O estudo mostrou que os níveis radiométricos da região são menores que os valores sugeridos pela UNSCEAR, não constituindo nenhum tipo de ameaça à população local. Contudo, devido à extração mineral no local, os autores sugerem que seja feita uma investigação sobre possíveis variações sazonais dos níveis radiométricos na região. MELI *et al.* (2013) utilizaram espectrometria gama para analisar carnes de animais selvagens a fim de obter informações sobre concentração de radionuclídeos naturais e artificiais, julgando estas amostras um excelente bioindicador de contaminação ambiental. Os autores detectaram a presença de ²¹⁰Po, ¹³⁷Cs, ⁴⁰K e ²²⁶Ra nas amostras, cujas concentrações específicas variaram de acordo com a contaminação do solo nos habitats dos animais abatidos.

AGBALAGBA *et al.* (2013) aferiram a concentração específica dos radionuclídeos naturais ^{226,228}Ra e ⁴⁰K em 54 amostras de água utilizada para consumo, oriundas de poços, reservatórios naturais e rios, na região de Niger Delta, Nigéria. Para obter o espectro foi utilizado um detector 3" x 3" de iodeto de sódio e a contagem foi feita por 29.000 s. Os resultados para concentração específica mostraram-se relativamente altos em todas as fontes de água, pois os valores ficaram bem acima dos níveis de referência publicados pela Organização Mundial de Saúde (WHO, 2008). O resultado obtido sugere que a água pode ter sido contaminada pela atividade de exploração de óleo. Os valores de dose efetiva comprometida tiveram valores acima dos valores sugeridos pela publicação 78 da ICRP (ICRP, 1997).

DESIDERI *et al.* (2014) determinaram a concentração específica do ²²⁸Ac, ²¹⁴Pb, ²¹⁴Bi, ²¹²Pb, ²⁰⁸Tl, ⁴⁰K e ¹³⁷Cs em alimentos para animais utilizando espectrometria gama. As amostras foram secadas a uma temperatura próxima a 105°C por 24 horas e posteriormente as amostras foram contadas em um detector HPGe com eficiência relativa de 25% por um período de 100.000 s. O autor pôde concluir que os suplementos fosfatados podem ter aumentado os níveis de radioatividade nos alimentos de nutrição animal.

1.3 Objetivo

Este trabalho tem como objetivo estimar a dose efetiva comprometida devido à ingestão dos radionuclídeos naturais ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²²⁸Th presentes nos alimentos da dieta dos habitantes do estado do Rio de Janeiro, a partir dos dados de consumo diário (IBGE, 2011) e dos coeficientes de conversão da publicação 119 da ICRP (2012).

1.4 Etapas

As etapas a serem cumpridas são aquelas enumerados abaixo:

1) Escolher as amostras com base nos dados do *Consumo Alimentar Pessoal* publicado pelo IBGE.

2) Obter os espectros de emissão gama e calcular a concentração específica para cada um dos radionuclídeos de interesse utilizando espectrometria de alta resolução em um detector de germânio hiper-puro (HPGe).

CAPÍTULO 2 Fundamentação teórica

2.1 Radioatividade natural

Decaimentos radioativos que ocorrem espontaneamente são exemplos de radioatividade natural. Existem três séries radioativas, conhecidas como a série de urânio, a série de actínio e a série de tório, nomeadas de acordo com o elemento que inicia a série (exceto a série de actínio que começa com um radioisótopo de ²³⁵U). Cada elemento da série decai através de núcleos instáveis por meio de emissões radioativas, até que cada uma delas termine em um isótopo estável do elemento chumbo.

2.1.1 Séries radioativas: ²³⁵U

Esta série de decaimento inclui elementos como: actínio, bismuto, frâncio, chumbo, polônio, protactínio, rádio, radônio, tálio e tório. Todos estão presentes, pelo menos transitoriamente, em qualquer amostra contendo ²³⁵U, quer seja metal, composto, minério ou mineral. Esta série termina com o isótopo estável ²⁰⁷Pb. A energia total liberada a partir de ²³⁵U até o isótopo estável ²⁰⁷Pb, incluindo a energia perdida para neutrinos , é próximo a 46,4 MeV.

²³⁵U compõe 0,72% do urânio natural. A série de decaimentos mostrada na Figura 2 envolve 13 radionuclídeos, sendo oito emissores alfa.

Dos radioelementos da série, apenas o ²³⁵U pode ser medido diretamente por espectrometria gama. Embora, ²²⁷Th, ²²³Ra e ²¹⁹Rn possam ser medidos com pouco mais de dificuldade, pois apesar de serem emissores gama, a probabilidade de emissão é baixa, para faixa de energia dos fótons de interesse. A medida direta de ²³⁵U na energia de 185,7 keV pode ser um infortúnio, visto que o ²²⁶Ra tem emissão de energia em 186,0 keV. A incapacidade dos detectores gama de resolver essas duas energias é a maior dificuldade da medição direta do ²³⁵U (GILMORE, 2008).



Figura 2. Série do Actínio (UMISEDO, 2007).

2.1.2 Séries radioativas: ²³⁸U

A cadeia de ²³⁸U é chamado de "séries de urânio" ou "série de rádio". Começa com ocorrência natural de ²³⁸U, esta série inclui elementos como bismuto, chumbo, polônio, protactínio, rádio, radônio e tório. Todos estão presentes, pelo menos transitoriamente, em qualquer amostra contendo urânio natural. A série termina com ²⁰⁶Pb. A energia total liberada a partir de ²³⁸U até o isótopo estável ²⁰⁶Pb, incluindo a energia cedida para neutrinos, é de aproximadamente 52 MeV.

Os nuclídeos desta série são listados na Figura 3. O ²³⁸U compõe 99,25% do uranio natural. Todos os radionuclídeos da cadeia têm meia vida menor ou muito menor que a meia vida do ²³⁸U. Três nuclídeos pertencentes a esta série são medidos

facilmente por espectrometria gama de alta resolução, segundo metodologia adotada neste trabalho: ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi.



Figura 3. Série do Urânio (UMISEDO, 2007).

2.1.3 Séries radioativas: ²³²Th

A cadeia do ²³²Th é comumente chamado de "série de tório" ou "tório em cascata", começando com ocorrência natural ²³²Th. Esta série inclui elementos como actínio, bismuto, chumbo, polônio, rádio, radônio e tálio. Todos estão presentes, pelo menos transitoriamente, em qualquer amostra experimental contendo tório. A série termina com o isótopo estável ²⁰⁸Pb. A energia total liberada a partir de ²³²Th até o isótopo ²⁰⁸Pb, incluindo a energia perdida para neutrinos, é de aproximadamente 43 MeV.

O tório natural corresponde a 100% do ²³²Th. A série de decaimentos é mostrada na Figura 4. Quatro nuclídeos pertencentes a esta série são medidos facilmente

por espectrometria gama de alta resolução, segundo metodologia adotada neste trabalho: ²²⁸Ac, ²¹²Pb, ²¹²Bi e ²⁰⁸Tl.



Figura 4. Série do Tório (UMISEDO, 2007).

2.1.4 Elemento ⁴⁰K

O potássio (K) possui três isótopos naturais, sendo dois estáveis: o ³⁹K com abundância natural de aproximadamente 93,26% e o ⁴¹K com abundância isotópica de aproximadamente 6,73%. O radioisótopo ⁴⁰K possui abundância natural de 0,0118% e meia vida de 1,26 bilhões de anos.

Cerca de vinte e quatro radionuclídeos primordiais de linha gama única estão identificados na literatura, sendo o ⁴⁰K mais significativo por estar presente essencialmente em todas as amostras ambientais. Ele é encontrado em altos níveis na maioria dos solos, mas a sua disponibilidade para as plantas é baixa devido à grande porcentagem estar na forma insolúvel. O potássio encontra-se na forma acessível

quando está presa às partículas de argila e pode trocar de lugar com outros íons positivos na dissolução do solo. Esta é a forma mais fácil das plantas absorverem o potássio, porém é também a forma sujeita à lixiviação (BRADY, 1989).

O potássio é o sétimo elemento mais comum no solo, e a atividade específica média devido ao ⁴⁰K é de 850 Bq.kg⁻¹ (NORM, 2014). No corpo humano, o ⁴⁰K comporta-se como um nutriente essencial devido à semelhança com o potássio estável, sendo uniformemente distribuído nos tecidos musculares e sua concentração mantém-se constante devido o equilíbrio homeostático. O corpo de um ser humano de 70 kg (homem padrão caucasiano) contém aproximadamente 140 g de potássio, consequentemente a atividade do ⁴⁰K correspondente é de 3700 Bq, sendo responsável por um equivalente de dose anual no corpo humano de 0,17 mSv para adultos e de 0,19 mSv para crianças (UNSCEAR, 2000), e a maior contribuição no cálculo da dose é devido à radiação beta e não à radiação gama emitida.

Normalmente os seres vivos apresentam radioatividade natural maior que a radioatividade natural encontrada ao seu redor. Um dos motivos é a necessidade de os seres vivos terem potássio em seu organismo. Em plantas, o potássio é conhecido como um dos três "nutrientes primários" (junto com o nitrogênio e o fósforo). Por sua vez, em seres humanos, o potássio é o terceiro mineral mais abundante no corpo humano, atrás apenas do cálcio e do fósforo (SCHEIBEL, 2006). Na Figura 5 é mostrado o esquema de decaimento do ⁴⁰K.



Figura 5. Esquema de decaimento do 40 K.

2.2 Radioatividade Artificial

A radioatividade artificial ocorre quando certo elemento previamente estável é exposto à uma radiação específica. Esse fenômeno foi descoberto por Marie Curie e Joliot quando estudavam os efeitos das partículas α sobre o núcleo de elementos leves. Quando boro, magnésio e alumínio eram bombardeados com as partículas α do polônio, emissões de prótons e nêutrons eram observadas (KAPLAN, 1978). Experimentos posteriores mostraram que mesmo depois de retirado as fontes emissoras de partículas α , os alvos antes estáveis, continuavam emitindo radiação, cuja curva de intensidade tinha comportamento parecido com aquelas obtidas no decaimento de materiais naturalmente radioativos, de acordo com a Equação 2.1:

$$A(t) = A_0 e^{-\lambda t}.$$
(2.1)
Onde: $A(t)$ é a atividade do radionuclídeo em um tempo t [Bq].

 A_0 é a atividade inicial do radionuclídeo [Bq].

 λ é a constante tempo [s⁻¹]

Após a descoberta de que o bombardeio de núcleos leves com partículas α pode gerar elementos radioativos, descobriu-se que reações nucleares induzidas por prótons, nêutrons, dêuterons e fótons também podem resultar em produtos radioativos (KAPLAN, 1978). Na Figura 6 é mostrado um gráfico conhecido como Carta de Radionuclídeos, sejam eles naturais ou artificiais. A área central da Figura 6 representa os núcleos estáveis (cor escura). A faixa colorida indica os tipos de decaimentos predominantes.



Figura 6. Carta de Radionuclídeos (IFGW, 2016).

2.3 Radionuclídeos em alimentos

A maior parte da radiação recebida pelo homem provém de fontes terrestres naturais, através das quais os radionuclídeos presentes no meio ambiente incorporam-se ao homem por intermédio de vias de transferência. Essas vias podem ser pelas plantas, água, animais e seus derivados. As vias de exposição definem as rotas pelas quais os radionuclídeos atingem um indivíduo ou uma população (AQUINO, 2006).

A medida de traços radioativos no ambiente e em alimentos é de fundamental importância para o monitoramento dos níveis de radiação a que o homem está exposto direta ou indiretamente. A deposição dos materiais radioativos da atmosfera nas partes superficiais da planta gera a contaminação direta, enquanto a sorção dos radionuclídeos do solo a partir do seu sistema de raízes se refere à contaminação indireta. Portanto, com o *fallout* (deposição de partículas radioativas que foram suspensas no ar depois de uma explosão ou acidente nuclear) os radionuclídeos podem se depositar diretamente sobre os alimentos ou, então, se incorporar aos nutrientes dos vegetais e serem absorvidos pelos mesmos, por via foliar ou por meio do solo (CARDOSO, 2012).
Fatores climáticos, como precipitação e vento, podem contribuir para a deposição de radionuclídeos nos vegetais. Além disso, fatores de natureza física e química do solo, também podem influenciar a sua presença nas plantas, favorecendo sua migração para fora da zona radicular como ilustra a Figura 7. A presença de radionuclídeos em vegetais pode ser considerada um mecanismo primário para a presença destes elementos em alimentos, uma vez que a maior parte do alimento consumido pelos humanos é de origem vegetal (AQUINO, 2006).



Figura 7. Esquema de translocação e deposição de radionuclídeos em vegetais (AQUINO, 2006).

A distribuição de íons e moléculas no interior das plantas é denominada de translocação. O fator de translocação pode ser definido pela deposição do radionuclídeo na superfície das folhas e também pelo que é absorvido e transferido para toda a planta, principalmente para as partes comestíveis. O grau de translocação depende da natureza da planta, ou seja, das suas características, do ambiente em que está se desenvolvendo, das propriedades químicas do radionuclídeo e do estágio de desenvolvimento da planta (AQUINO, 2006).

As diferenças nas características fisiológicas, estruturais e morfológicas das espécies vegetais têm grande efeito na acumulação de radionuclídeos nas plantas. As plantas que crescem em solos onde existam radionuclídeos não conseguem evitar sua absorção, mas somente limitar sua translocação de forma que, quando acumulados, terão diferentes graus de concentrações (AQUINO, 2006).

O aumento da quantidade de um determinado radionuclídeo na raiz da planta, em relação à sua parte aérea, indica uma maior resistência dessa espécie à absorção do radioisótopo, pois quanto maior a sua resistência, maior será a quantidade de radioisótopo que ficará acumulada na raiz.

A transferência dos radionuclídeos do solo para a planta pode levar à contaminação do homem por meio da inserção dos vegetais na cadeia alimentar. A estimativa da transferência de radionuclídeos em diferentes partes de um ecossistema pode ser feita por meio de modelagens matemáticas. Nesses modelos, os valores que mostram a interação entre os diferentes compartimentos como água, solo, plantas, entre outros, são referenciados como parâmetros dos modelos. Em agrossistemas, o parâmetro que descreve a transferência entre os compartimentos solo e planta é denominado Fator de Transferência (FT). Este fator é calculado levando em conta o conteúdo total do radionuclídeo presente na planta e o total presente no solo (AQUINO, 2006).

Dentre os radioisótopos naturais que podem entrar na dieta humana, deve-se destacar o ⁴⁰K. O cálcio, o fósforo e o potássio são os minerais mais abundantes no corpo humano. O potássio é um nutriente essencial para o metabolismo e funcionamento das células, sendo fundamental para manter o equilíbrio dinâmico apresentado pelas membranas, depositando-se principalmente nos músculos. Portanto, toda matéria orgânica apresentará, de alguma forma, uma pequena quantidade de radioatividade.

O isótopo radioativo ⁴⁰K é o que mais contribui (cerca de 60 a 70%) para a dose total pela radioatividade natural interna. O homem padrão caucasiano (homem de referência, 70 kg) contém aproximadamente 140 g de potássio distribuído em todos os órgãos do corpo. Dessas 140 g de potássio, 0,01652 g seriam de ⁴⁰K, o que corresponde a atividade de 3,7 kBq (UNSCEAR, 2000). Mas não existe uma relação precisa entre o conteúdo médio de potássio no alimento e a atividade radioativa associada. Fatores outros, como a distribuição geográfica do ⁴⁰K no solo, a capacidade de assimilação e incorporação de potássio pela planta ou organismo, ou mesmo particularidades sobre a adubação e técnicas agrícolas utilizadas, acarretam uma larga distribuição de valores (SCHEIBEL, 2006)

Alguns grãos tais como: feijão, soja, lentilha, frutos secos (como nozes, amêndoas e castanhas), e principalmente frutas secas ou em conserva (como tâmaras, damasco, passas, figos, ameixas) estão entre os alimentos que apresentam as maiores quantidades relativas de potássio. Outros, como frutas (abacates, bananas, melão) e

raízes e tubérculos (batata, batata doce, mandioca, beterraba e cenoura) também contêm uma quantidade relativamente grande de potássio (CARDOSO, 2012).

Dentre os radioisótopos artificiais, deve ser destacado o Cs-137 que pode ser "carregado" por ventos da estratosfera e da alta troposfera e se depositar nas folhagens usadas na alimentação de animais e humanos. O Cs-137 é facilmente absorvido por plantas, entrando nas cadeias alimentares. Devido à sua semelhança química com o potássio, tende a acompanhá-lo, podendo depositar-se parcialmente nos músculos (CARDOSO, 2012).

Na Figura 8 é mostrado o ciclo de incorporação dos radionuclídeos, descrevendo como os elementos radioativos naturais ou aqueles provenientes do *fallout* chegam ao homem.



Figura 8. Meios de incorporação dos radionuclídeos pelo homem (MELQUIADES, 2004).

2.4 Efeitos dos radionuclídeos no organismo

A interação da radiação ionizante com tecido humano tem grande influência no dano causado ao ácido desoxirribonucleico (DNA). Se qualquer tipo de radiação, particuladas ou não, for absorvida pelos materiais biológicos, existe a possibilidade de interações com regiões críticas da célula. Os átomos do alvo podem ser ionizados ou excitados, iniciando então uma cadeia de eventos, cuja consequência é o dano biológico.

Esse processo é conhecido como *Ação Direta da Radiação*, comum às radiações de altas transferências energéticas como elétrons e partículas alfa (NOUAILHETAS, 2012).

Por outro lado, a radiação pode interagir com átomos ou moléculas de regiões não críticas, mas por causa da produção de radicais livres, danos localizados podem causar nas células os mesmos danos biológicos citados (HALL, 2012). Esse evento chama-se *Ação Indireta da Radiação*.

Para que se possa perceber as razões pelas quais a *ação indireta* afeta a estrutura celular, é necessário entender detalhes na estrutura eletrônica dos elementos. O elétron além de girar em torno do núcleo também gira em torno do seu próprio eixo, conhecido como *spin* do elétron. No entanto, nas camadas eletrônicas, para cada elétron que gira rotacionalmente em sentido horário, existe seu par que gira em sentido anti-horário, demonstrando alto grau de estabilidade química.

Se um átomo ou molécula tem quantidades ímpares de elétrons, isso significa que existe um *spin* para o qual não existe seu par em movimento rotacional contrário. Esse elétron é dito desemparelhado, tornando esse átomo ou molécula altamente reativa (HALL, 2012).

Quando a radiação interage com a matéria, uma das consequências esperadas é a ionização, processo pelo qual um ou mais elétrons são retirados da camada de valência de um átomo ou molécula (SILVA, 2008). Ao interagir com a célula, principalmente com a água que compõe a célula em cerca de oitenta por cento (HALL, 2012), a radiação produz um par de íons (negativo e^- , positivo H_2O^+). O íon positivo, H_2O^+ , tem um elétron desemparelhado e, portanto, é um radical livre. Além disso, o elétron aquoso (e⁻) reage com os hidrogênios dos aminoácidos promovendo a sua desaminação (SILVA, 2008), que é o grupo amino liberado como amônia (vide Figura 9).



 $H_2O^+ + H_2O = H_3O^+ + OH$

 $H_2O^+ \rightarrow H^+ + OH$ $H_2O^- \rightarrow OH^- + H$

Figura 9. Esquema da quebra molecular da água.

Sequencialmente, o íon positivo H_2O^+ reage com outra molécula de água formando um radical hidroxila altamente reativo (OH). A hidroxila formada possui nove elétrons, remetendo-nos a ideia de que um elétron é desemparelhado, tornando a molécula altamente reativa. Esta reage diretamente com proteínas absorvendo os hidrogênios do carbono de alguns grupos e também de alguns anéis aromáticos, o que motiva a produção de radicais reativos. Como a energia depositada na molécula não se dá de forma homogênea, esses produtos da radiólise (ionização da molécula de água) acontece em certos grupamentos moleculares provocando danos (SILVA, 2008).

A hélice do DNA tem um diâmetro de aproximadamente dois nanômetros (2 nm), e estima-se que os radicais livres produzem um dano cilíndrico de aproximadamente quatro nanômetros, como ilustrado na Figura 10. De igual forma, julga-se que dois terços dos danos causados pela radiação ao DNA têm origem nos radicais hidroxilas. O período entre a quebra da cadeia química e a resposta do efeito biológico pode durar horas, dias, meses, anos ou gerações dependendo das consequências envolvidas (HALL, 2012). A consequência menos danosa seria a morte celular, pois esta seria substituída em um processo de reconstrução natural do organismo. No entanto, se o dano radioativo for de características oncogênicas, suas consequências podem se manifestar em qualquer período posterior ao evento inicial.

Outra hipótese de consequência seria a mutação no gene do DNA, e seus efeitos poderiam se manter inertes por gerações.



Figura 10. Hélice do DNA e sua espiral de 2 nm. O dano causado por radicais livres em torno de 4 nm (HALL, 2012).

Toda célula é composta por um conjunto de moléculas que dá forma a sua estrutura. Esta característica estrutural é devido à membrana que compõe a célula, responsável pela permeabilidade seletiva de nutrientes, secreções e rejeitos que precisam transpor essa barreira. Mudanças químicas na estrutura da membrana celular provocam alterações na sua capacidade seletiva (ANDREUCCI, 2003). Se tais mudanças chegarem às estruturas do DNA, mutações genéticas são prováveis em células filhas.

A exposição interna da população aos radionuclídeos pode se dar de forma direta por meio da inalação, ou indiretamente por meio da ingestão de água e alimentos (carne, leite, vegetais, etc.) contaminados.

Os elementos radioativos existentes no ambiente que fazem parte do nosso corpo são isótopos radioativos dos elementos potássio, carbono e hidrogênio, e os elementos pesados que compõem as séries do ²³⁸U, ²³⁵U e do ²³²Th.

Os isótopos radioativos dos elementos pesados não desempenham nenhum papel na constituição do organismo, apenas nele se alojam. Sua alocação dependerá de sua semelhança química com outros elementos. Por exemplo o ²²⁶Ra, por sua semelhança química com o Ca, se fixará preferencialmente nos ossos; o ²¹⁰Po se fixará nos pulmões. Já o ⁴⁰K localiza-se preferencialmente nos músculos numa proporção de 0,2 - 0,3%; o ¹⁴C encontra-se em lipídios, glicídios e protídeos; o ³H forma parte de todas substâncias que contém H (inclusive água). Sendo assim, a radioatividade no corpo humano estará relacionada com a região e a dieta alimentícia.

Outra via de entrada de material radioativo é a respiração. O ar contém gases e pode conter pó radioativo. Por exemplo, o radônio pode fundir-se ao sangue através dos alvéolos pulmonares: o pó radioativo se deposita ao longo do aparelho respiratório sendo carregado por mucosas até o aparelho digestivo de onde é levado até a circulação. O ²²²Rn e o ²²⁰Rn se desintegram rapidamente formando o ²¹⁰Pb (meia vida aproximada de 22 anos) que se fixa nos pulmões ou na estrutura óssea.

A água é a substância que se encontra em maior proporção na constituição dos seres vivos. As águas que procedem de terrenos graníticos possuem, em geral, maior radioatividade do que as que procedem de terrenos calcários sendo que os elementos que mais contribuem para a radioatividade da água potável são o radônio e o ²²⁶Ra. Também convém lembrar que as águas correntes de superfície possuem uma concentração de radônio inferior à das águas subterrâneas (IF-UFRGS, 2016).

Na Tabela 1 é mostrada uma estimativa das quantidades de materiais radioativos presentes no corpo humano.

Radionuclídeo	Massa total (g)	Atividade total (Bq)	Quantidade diária ingerida ou inalada pelo homem (g)
Uranio	90.10-6	1,1	1,9.10-6
Tório	30.10-6	0,11	3.10-6
Potássio-40	17.10 ⁻³	4400	0,39.10-3
Radio	31.10 ⁻¹²	1,1	2,3.10 ⁻¹²
Carbono-14	95.10 ⁻⁶	1500	1,8.10-6
Trício	0,06.10 ⁻¹²	23	0,003.10 ⁻¹²
Polônio	0,2.10 ⁻¹²	37	0,6.10 ⁻⁸

Tabela 1. Elementos radioativos presentes no corpo humano (HEILBRON FILHO,

2004).

A quantidade de radionuclídeos presentes no organismo de uma pessoa pode ser descrita a partir de uma queda exponencial em função do tempo. Isso se dá porque além do próprio decaimento radioativo, o conteúdo de uma dada substância no organismo diminui por processos de excreção. Nesses casos, o parâmetro *meia-vida efetiva* quantifica o intervalo de tempo para que a concentração de um dado material radioativo

decaia pela metade no corpo humano. A *meia-vida efetiva* $\left(\frac{1}{T_{\frac{1}{2}eff}}\right)$ é uma composição

entre a *meia-vida física* $\left(\frac{1}{T_{\frac{1}{2}fis}}\right)$ de um dado radioisótopo e a *meia-vida biológica* $\left(\frac{1}{T_{\frac{1}{2}biol}}\right)$, de acordo com a Equação 2.2 (SCHEIBEL, 2006).

$$\frac{1}{T_{\frac{1}{2}eff}} = \frac{1}{T_{\frac{1}{2}fis}} + \frac{1}{T_{\frac{1}{2}biol}}$$
(2.2)

2.5 Dose efetiva por ingestão

As doses internas de radiação são significativas e contribuem em cerca de 80% para dose total recebida pelo homem devido à radioatividade natural. O principal radioisótopo responsável pela dose interna é o ⁴⁰K, contribuindo com cerca de 70% da dose total (SCHEIBEL, 2006).

Os elementos incorporados via alimentos são prontamente absorvidos pelo trato gastrointestinal. Essa incorporação resultará em dose efetiva comprometida. A ICRP (*International Commission on Radiological Protection*) tem publicações com atualizações sucessivas para os valores dos coeficientes de conversão de dose para estimativa da dose efetiva comprometida. O cálculo é feito levando em conta uma única ingestão, mas pode ser aplicado para ingestões crônicas. Nesse caso, para calcular a dose efetiva comprometida em 50 anos há de se obter a atividade incorporada a cada ano a partir do consumo de cada alimento e da atividade específica média. Disso obtémse a contribuição à dose efetiva interna anual que somada durante 50 anos chega-se a dose efetiva comprometida devido a cada radionuclídeo ingerido cronicamente (UMISEDO, 2007).

A dose efetiva total a partir da ingestão e inalação de radionuclídeos é de 310 μ Sv.ano⁻¹, onde 170 μ Sv deve-se ao ⁴⁰K e 140 μ Sv aos radionuclídeos das séries do urânio e tório (UNSCEAR, 2000).

2.6 ICRP 119

A ICRP 119 (ICRP, 2012) é uma compilação dos coeficientes de dose para incorporação de radionuclídeos por trabalhadores e membros do público, e uma compilação dos coeficientes de conversão para o uso em proteção radiológica ocupacional frente radiação externa publicadas nas ICRP's 68, 72 e 74 (ICRP, 1994, 1995, 1996). A ICRP 119 é uma referência para coeficientes de dose com base nas recomendações da ICRP 60 (ICRP, 1991), cujos valores foram atualizados na publicação da ICRP 103 (ICRP, 2007).

Além de desenvolver um sistema de proteção radiológica usado como base para regulamentação e aplicabilidade a nível mundial, a ICRP fornece também informações essenciais para a implementação do sistema de proteção radiológica. O cerne da ICRP 119 (ICRP, 2012) é a utilização dos conceitos de "dose equivalente" e "dose efetiva", a partir de coeficientes de dose (dose por unidade de exposição). Os coeficientes de dose são calculados conforme especificado na Publicação 60 (ICRP, 1991).

Os coeficientes de dose efetiva comprometida para inalação e ingestão de radionuclídeos foram calculados usando o modelo da Publicação 66 (ICRP, 1994a) do trato respiratório humano e o modelo da Publicação 30 (ICRP, 1979) para o trato gastrointestinal. Os modelos biocinéticos utilizados para descrever a distribuição, a retenção de tecido, e a excreção de elementos químicos e seus radioisótopos após a sua absorção no sangue foram àquelas desenvolvidas para a série da Publicação 30 (ICRP, 1979, 1980, 1981, 1988). Os modelos de dosimetria usados foram os especificados nas Publicações 30 e 66 (ICRP, 1979, 1994a). Os fatores de radiação e de ponderação de tecidos utilizados foram os indicados na Publicação 60 (ICRP, 1991).

Os coeficientes de dose para incorporações de radionuclídeos por crianças de 3 meses, 1, 5, 10 e 15 anos de idade, divulgados na Publicação 72 (ICRP, 1996a), foram calculados usando o modelo da Publicação 66 (ICRP, 1994a) do trato respiratório humano e o modelo da Publicação 30 (ICRP, 1979) para o trato gastrointestinal. Os modelos biocinéticos usados para descrever a distribuição, retenção e excreção de radionuclídeos foram desenvolvidos para considerar a dependência de idade no caso de

radioisótopos dos 31 elementos para os quais coeficientes de dose foram publicados nas ICRP's 56, 67, 69 e 71 (ICRP, 1990, 1992, 1995a, b). A Publicação 72 tornou público os coeficientes de dose para radioisótopos de mais 60 elementos usando modelos biocinéticos desenvolvidos para a série da Publicação 30 (ICRP, 1979, 1980, 1981, 1988).

Os coeficientes de dose para os radioisótopos destes elementos adicionais levam em conta mudanças na absorção intestinal devido à idade, massa corpórea e massa dos órgãos, e as taxas de excreção urinária, mas não na retenção biocinética dos órgãos e excreção após a absorção no sangue. A Publicação 72 afirma que o uso de parâmetros biocinéticos adultos no cálculo dos coeficientes de dose para as crianças tendem a superestimar doses porque as taxas de eliminação de tecidos e excreção são geralmente maiores em idades mais jovens

2.7 Espectrometria Gama

2.7.1 Detectores semicondutores

A detecção da radiação ionizante é o resultado da interação desta com algum meio sensível a esta radiação, de onde seja possível estrair informações. Existem vários materiais que podem ser utilizados para a detecção de radiação ionizante, sendo os detectores mais utilizados aqueles que utilizam regiões sensíveis a base de gás, os detectores cintiladores, semicondutores e os detectores termoluminescentes. Para o presente trabalho, foi utilizado um detector semicondutor. Os semicondutores funcionam a partir do princípio da excitação de elétrons, que passam das bandas de valência para a banda de condução dando origem ao processo de detecção (KNOLL, 2010).

Alguns detectores semicondutores são resfriados a temperatura criogênica porque à temperatura ambiente estes materiais possuem seus elétrons, da banda de valência, com quantidade de energia capaz de migrar para a banda de condução criando a chamada corrente de fuga e interferindo no resultado esperado (ruído), mesmo sem receber energia proveniente da interação com alguma forma de radiação ionizante.

A principal vantagem do detector semicondutor está na energia média necessária para criar um par elétron-buraco que é cerca de 10 vezes menor do que a energia para criar um par elétron-íon, processo este utilizado nos detectores a gás, resultando numa maior resolução em energia. A energia média para criar um par elétron-buraco a 77 K, é de 3,76 eV para o silício e de 2,96 eV para o germânio. O grande número de pares criados propicia duas vantagens aos detectores semicondutores sob o ponto de vista da resolução em energia: diminui a flutuação estatística e a influência do ruído eletrônico, levando a uma melhor relação sinal-ruído (KNOLL, 2010).

Sistema espectrométrico

O sistema de aquisição de espectrometria de raios gama compreende os seguintes componentes:

- 1. Detector;
- Fonte de alta tensão para "alimentar" o detector que possibilita aplicar tensão de 0 – 5000 V;
- Pré-amplificador. A função básica dos pré-amplicadores é transformar a carga coletada no processo de detecção, num pulso de tensão, cuja amplitude é proporcional à carga total coletada.
- Amplificador. Este, além de amplificar, também dá forma ao pulso (gaussiana, semi-gaussiana e etc.) vindo do pré-amplificador;
- 5. Analisador multicanal (MCA Multichannel Analyser);
- 6. Blindagem preferivelmente construída de chumbo para o detector com uma cavidade adequada para acomodar as amostras;
- 7. Microcomputador para instalação do MCA e do *sotfware* de gerenciamento para armazenamento dos dados.

O amplificador recebe um pulso de tensão do pré-amplificador e produz um pulso de tensão de saída, que é registrado no MCA. O MCA mede a altura do pulso (em volts), originado no detector, que é proporcional à energia dos fótons. Um conversor analógico-digital no MCA converte o pulso de tensão em um número de canal. Cada canal corresponde a uma faixa estreita de tensão. Conforme os pulsos de tensão são coletados no MCA, este vai guardando na memória uma distribuição das contagens dos pulsos com respeito à altura destes pulsos. Esta distribuição de pulsos (energia do raio gama detectado) devidamente analisado é chamada de espectro (CROUTHAMEL *et al.*, 1970).

Blindagem

A espectrometria de raios gama de amostras ambientais de baixa atividade normalmente se depara com o problema de maximizar a taxa de contagem no fotopico de interesse em relação à contagem de fundo, além da necessidade da utilização de detectores que discriminam raios gama de energias próximas. A radiação de fundo (*background*) do sistema tem influência determinante na qualidade do espectro adquirido pela espectrometria de raios gama, e por isso o sistema deve apresentar a radiação de fundo tão baixa quanto for possível atingir. Então, para analisar amostras ambientais de baixa atividade é essencial realizar uma adequada blindagem do detector e da amostra para reduzir a radiação de fundo do ambiente no espectro da amostra (CARDOSO, 2012).

Existem blindagens padrões para uso em espectrometria de raios gama de amostras ambientais de baixa atividade. Essas blindagens são fabricadas com chumbo, mas outros materiais de número atômico menor também fazem parte da blindagem para absorver os raios X derivados da interação dos raios gamas com o chumbo, diminuindo a sua incidência no detector. A espessura de chumbo utilizada na blindagem depende da atenuação desejada para um dado raio gama (AAECRE, 1980).

Atenção especial deve ser dada à blindagem do detector para garantir os cuidados supracitados. A blindagem ideal deve utilizar chumbo envelhecido, assim denominado, por ser isento de impurezas radioativas, principalmente aquelas provenientes de precipitações de testes nucleares (*fallout*).

Para blindagens com alto fator de atenuação, principalmente em relação às radiações do meio ambiente (*background*) devem-se usar três camadas metálicas na sua composição. A primeira camada externa é constituída de chumbo (blocos ou peça fundida), uma segunda camada de revestimento interno com espessura cerca de 5 mm de cádmio ou estanho, e uma terceira camada de cobre ou alumínio, com cerca de 2 mm de espessura.

A função da camada de cobre (ou alumínio) é de atenuar os raios X característicos emitidos pela fluorescência do chumbo, com energias entre 72 a 87 keV. A camada de cádmio (ou estanho) é para atenuar estas radiações do chumbo que, por sua vez, emite raios X característicos com energias entre 22 e 27 keV. O cobre atenua tais radiações, mas emite raios X característicos de 8 keV, com muito baixa intensidade. (TAUHATA, 2014).

Criostato e dewar

Outra parte importante do sistema de detecção é o criostato, que encapsula o cristal sob vácuo para inibir a condutividade térmica entre o cristal e o ar que o envolve (KNOLL, 2010), mantendo assim a temperatura criogênica do cristal (Figura 11). É o criostato que define o tipo de geometria do detector que também abriga o FET (transistor de amplificação de tensão de alta impedância) e o pré-amplificador.

O contato entre o criostato e o *dewar* é feito através do "Dedo Frio". O "Dedo Frio" é uma liga especial de cobre, que é mergulhado no nitrogênio líquido contido no *dewar* e conectado ao cristal por um acoplamento especial, evitando a transmissão de choque mecânico. Para absorver gases, principalmente O_2 e N_2 , que podem penetrar em suas vedações com o tempo, o criostato é parcialmente preenchido com uma "peneira molecular". Sem o vácuo, o criostato não conseguiria manter a temperatura do cristal em níveis aceitáveis e permitiria o depósito de umidade nos eletrodos do detector, piorando a resolução. Pois a contaminação da superfície acarreta o aumento na corrente de fuga do detector, e pode prejudicar a sua resolução em energia. A presença de água e outros contaminantes nas vizinhanças do detector geralmente será mais significativa quando o detector estiver na temperatura ambiente. Por esta razão, pode ser aconselhável manter os detectores de germânio constantemente na temperatura de nitrogênio líquido como precaução para assegurar um maior tempo de vida útil (KNOLL, 2010).



Figura 11. Dewar e criostato.

2.7.2 Equilíbrio secular

Quando se estuda decaimentos em série, o equilíbrio secular é um evento importante a ser considerado.

Seja uma cadeia radioativa, cujos subíndices 1 e 2 indicam informações relacionadas ao nuclídeo pai e filho, respectivamente. Seja dN/dt a taxa de variação do número de nuclídeos por unidade de tempo:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1 \tag{2.3}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \tag{2.4}$$

Onde λi é a constante decaimento para o radionuclídeo $i\left(\lambda = \frac{ln2}{T_{1/2}}\right)$.

Considerando $N_1(0)=N_0$ e $N_2(0)=0$, tem-se que a solução da equação diferencial para Equação 2.4 é dada pela Equação 2.5:

$$N_2(t) = N_0 \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$
(2.5)

Uma vez que a atividade é dada pela relação $A = \lambda N$, podemos escrever:

$$A_2(t) = A_0 \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \left(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t} \right)$$
(2.6)

Ao considerar a meia vida do nuclídeo pai muito maior que do nuclídeo filho, pode-se considerar $(\lambda_2 - \lambda_1 \approx \lambda_2)$ e também $(e^{-\lambda_1 t} \approx 1)$. Nestas condições, a Equação 2.6, torna-se:

$$A_2(t) = A_0 (1 - e^{-\lambda_2 t})$$
(2.7)

Fazendo $t \gg T_{1/2},$ pode-se aproximar a Equação 2.7 para:

$$A_2(t) = A_1 \tag{2.8}$$

Essa aproximação pode ser aplicada sempre que diversos nuclídeos de meia vida curta surgem de sucessivos decaimentos, a partir de um nuclídeo pai, cuja meia vida seja longa. Para que o equilíbrio secular se estabeleça, é necessário ter certeza que nenhum elemento da cadeia de decaimentos seja removido ou escape naturalmente.

O equilíbrio secular é mostrado graficamente na Figura 12. A curva (a) mostra o aumento da quantidade do número de átomos filho, até atingir o número de átomos igual do nuclídeo pai (b). A curva (c) é a atividade total da amostra e a curva (d) mostra uma fração do nuclídeo filho e seu decaimento.



Figura 12. Equilíbrio secular (KAPLAN, 1978).

O período necessário para que um sistema fechado, contendo inicialmente os nuclídeos pais de cada série natural de decaimento, atinja 98,5% do equilíbrio é cerca de seis (6) vezes a meia-vida do radionuclídeo filho de menor constante de decaimento (VASCONCELOS, 2010).

2.7.3 Atividade específica

Uma das vantagens da espectrometria é a habilidade que existe no método para fazer medidas diretamente a partir de emissões gama sem a necessidade de alguma preparação química. Permite fazer identificações qualitativas e quantitativas de radionuclídeos que porventura estejam na amostra. Uma das técnicas existentes para quantificar emissões gama é a atividade específica, que determina a concentração de radionuclídeos em uma substância radioativa. Pode-se determinar a atividade específica de certo elemento dividindo a sua atividade por sua massa (Equação 2.9).

$$A_{esp} = \frac{\frac{N_{LlQ}}{\varepsilon.P_{\gamma}.t}}{m}$$
(2.9)

Onde: N_{LlQ} corresponde ao número de fótons, da energia de interesse, registradas pelo detector.

 ε corresponde à eficiência de detecção.

 P_{γ} corresponde à probabilidade de emissão gama.

t corresponde ao tempo de aquisição do espectro [s].

m é a massa da amostra [kg]

A unidade geralmente utilizada para atividade específica é: $\left[\frac{Bq}{ka}\right]$

2.7.4 Limite Mínimo de Detecção (LMD)

O limite mínimo de detecção de um espectrômetro de raios gama é a medida de sua habilidade em detectar um raio gama na presença de interferências naturais, como radiação de fundo e/ou espalhamento Compton.

Existem algumas maneiras de calcular o LMD, no entanto, o método proposto por Currie é geralmente a forma mais utilizado (FERNANDO, 2013). Alguns parâmetros são necessários para definição do LMD.

- Limite Crítico (Lc): Estabelece se a área para fazer a medida é estatisticamente significante, ou se apenas é uma flutuação da radiação de fundo.
- Nível de Confiança (k): é a probabilidade de um parâmetro a ser estimado se encontre dentro de um intervalo de confiança. (k=1,645 para nível de confiança de 90%. k=1,96 para um nível de confiança de 95%, etc.).
- 3) σ₀: Desvio padrão da contagem quando sinal líquido é zero.

Por definição, temos que o limite de detecção é dado pela Equação 2.10 (CURRIE, 1968):

$$L_D = k^2 + 2.k.\sigma_0$$
(2.10)

Sendo σ_0 igual a zero, pode-se afirmar que a variância da contagem bruta é igual à variância da contagem da radiação de fundo: $\sigma_0^2 = \sigma_b^2 + \sigma_{BG}^2$

Onde: σ_b^2 é a variância da contagem bruta.

 σ_{BG}^2 é a variância da contagem da radiação de fundo.

A Equação 2.10 torna-se:

$$L_{D} = k^{2} + 2. k. \sqrt{2. \sigma^{2}}$$
$$L_{D} = k^{2} + 2. \sqrt{2}. k. \sigma$$
(2.11)

Onde σ é desvio padrão da contagem da radiação de fundo.

O nível de confiança k, usado no cálculo do LMD, está relacionado ao percentual de medidas que estão fora do intervalo definido a partir da média. Para este trabalho, 95% das medidas (k=1,96) estão dentro de 1,96 σ do valor médio.

CAPÍTULO 3 Materiais e Métodos

3.1 O detector HPGe

Para obter os espectros de emissão gama foi utilizado um detector de Germânio Hiper Puro (HPGe) vertical da Canberra, modelo GC3020, com eficiência relativa de 30%. O cristal de germânio tipo coaxial possui 62 mm de diâmetro e 40 mm de altura. Este detector tem resolução em energia especificada pelo fabricante de 1,808 keV para o pico de 1332 keV do ⁶⁰Co.

Foi utilizada uma blindagem produzida pela Canberra, modelo 747, com 10 cm de chumbo, com a parte interna recoberta de 1 mm de estanho, que por sua vez, também é recoberto por 1,6 mm de cobre. A blindagem ainda é recoberta externamente por 9,5 mm de aço com baixa percentagem de carbono. Esta blindagem tem uma cavidade com diâmetro interno de 27,9 cm por 40,6 cm de profundidade.

Um pré-amplificador do tipo RC modelo 2002C, está acoplado ao detector no criostato, operando com baixo ruído por estar em equilíbrio térmico com nitrogênio líquido. O criostato tem modelo 7500SL e o *dewar* possui capacidade de 30 litros.

O sistema multicanal utilizado foi um DSA 1000 (*Digital Spectrum Analyzer*), de 8192 canais. A voltagem usada para criar área de depleção máxima foi de 4500 volts.

O programa de análise Gama do *Genie 2k*, inclui um conjunto de algoritmos de análise avançados para processamento adicional de espectros gama adquiridos. Os algoritmos fornecem uma análise completa dos espectros, como área, largura a meia altura, eficiência.

Na Figura 13 é mostrado o sistema de aquisição de dados utilizado neste trabalho.



Figura 13. Espectrômetro utilizado com seus acessórios e componentes: a) observa-se o dewar. b) a blindagem do detector. c) O multicanal DSA 1000. d) o espectro de uma amostra.

3.2 Calibração em energia do sistema de aquisição

A calibração em energia foi realizada com o auxílio do programa Gamma Analysis do Genie 2000, responsável pelo controle e armazenamento dos dados adquiridos pelo MCA (DSA 1000), que faz um ajuste linear quando duas linhas de energia são definidas e um ajuste quadrático se três ou mais linhas de energia são definidas.

A calibração em energia do sistema foi feita utilizando fontes radioativas certificadas, totalizando um número de 16 pontos experimentais que correspondem aos picos energéticos dos radionuclídeos dispostos na Tabela 2.

Radionuclídeos	Energias (keV)	
²⁴¹ Am	59,5	
¹⁵⁵ Eu	86,5 - 105,3	
¹³⁷ Cs	661,7	
⁵⁴ Mn	834,8	
¹³³ Ba	80,9 - 276,4 - 302,8 - 356,0 - 383,8	
⁶⁵ Zn	1115,6	
⁴⁰ K	1460,8	
²² Na	511 - 1274,5	
⁶⁰ Co	1173,2 – 1332,5	

Tabela 2. Radionuclídeos e suas respectivas energias utilizados na calibração emenergia do sistema de detecção.

3.3 Atividade específica

Quando o espectro gama de uma amostra é obtido, é possível identificar os radionuclídeos emissores presentes nesta amostra por meio da calibração em energia. Outro passo importante em uma análise radiométrica, depois de identificar o radionuclídeo emissor na amostra, é quantificar a sua atividade específica. Para isso são utilizados alguns parâmetros, anotados na Equação 3.1 (IAEA, 1989):

$$A_{esp} = \frac{N_L}{\varepsilon. P_{\gamma}. t. m}$$
(3.1)

Onde A_{esp} é a atividade especifica do radionuclídeo dado em $Bq.kg^{-1}$. N_L é a área líquida do fotopico de interesse, *m* é a massa da amostra em kg, ε é eficiência de contagem para uma energia específica (γ), P_{γ} é a probabilidade de emissão gama (γ) na energia do fotopico para dado radionuclídeo e *t* é o tempo de contagem em segundos.

A área líquida de contagem é a quantidade total de contagens na área do pico de

energia de interesse descontado do fundo Compton e a radiação de fundo. Para subtração dos espectros foi utilizado o programa Genie 2k. O número de contagens depende da eficiência de detecção (a ser discutido na seção 3.4), que por sua vez, depende da energia do fóton emitido, das características físicas do detector, das características físicas da amostra e do tempo de contagem, que para este trabalho foi de 28800 segundos.

Para aferir a atividade específica do ²²⁸Th foi utilizada a energia 238,6 keV da radiação gama do ²¹²Pb, com probabilidade de emissão de (43,6 ± 0,5)%. Para aferir a atividade específica do ²²⁸Ra foi utilizada a energia 911,1 keV do ²²⁸Ac, que tem probabilidade de emissão de (25,8 ± 0,4)%. Para aferir a atividade específica do ²²⁶Ra foi utilizada a energia 1120,3 keV do ²¹⁴Bi, que tem probabilidade de emissão de (14,92 ± 0,03)%. Para aferir a atividade específica do ⁴⁰K e do ¹³⁷Cs foram utilizadas suas linhas de emissão: 1460,8 keV com probabilidade de emissão de (10,66 ± 0,13)% e 661,7 keV com probabilidade de emissão de (85,10 ± 0,20)%, respectivamente. As probabilidades de emissão, assim como suas incertezas, utilizadas para cálculo de atividade específica, de acordo com a equação 3.1, foram obtidas em dados disponíveis no site do BIPM (*Bureau international des poids et mesures*).

3.4 Eficiência de detecção

A eficiência de detecção para cada energia foi feita utilizando o pacote de programas LabSOCS (*Laboratory SOurceless Calibration Software*) da Canberra. Para tal, foi necessário modelar a geometria utilizada em ambiente computacional inserindo as características físicas, químicas e geométricas do béquer e da amostra analisada. Após a modelagem geométrica, o programa divide toda a região fonte (porta-amostra e amostra) em 1024 voxels, e de forma aleatória escolhe um ponto em cada voxel e calcula a eficiência de detecção a partir dos valores encontrados. Depois o programa dobra o número de voxels e faz todo o processo novamente, e obedecendo a critérios de convergência compara os valores. Caso os valores de eficiência simulados não convirjam, o número de voxels é dobrado novamente até obter a convergência satisfatória. As energias simuladas são pré-definidas (45, 60, 80, 100, 150, 200, 300, 500, 700, 1000, 1400 e 2000 keV). Outra vantagem da simulação é que a correção devido ao efeito de auto atenuação da radiação gama já é feito diretamente pelo programa, não havendo necessidades de utilizar fatores de correção. Na Figura 14 é

mostrada a visualização gráfica do *Geometry Composer*, integrante do pacote de programas LabSOCS.



Figura 14. Visualização gráfica do *Geometry Composer*. Em (a) pode-se observar o gabarito da geometria a ser modelada. Em (b) a matriz da caixa de diálogo onde devem ser inseridas as dimensões do *becker*, como proposto em (a). Em (c) o resultado visual das inserções feitas em (b).

As dimensões dos porta-amostras foram feitas utilizando um paquímetro da marca Lee Tools com resolução de 0,02 milímetros. Para cada amostra aferida foi necessário fazer uma geometria correspondente devido às suas diferentes densidades, portanto foi gerada uma curva de eficiência para cada amostra utilizada. Na Figura 15 é mostrada uma típica curva de eficiência gerada no programa LabSOCS para o detector de germânio hiperpuro (HPGe).



Figura 15. Típica curva de eficiência para o HPGe obtida com o programa Genie 2k.

3.5 Incertezas da atividade específica

O erro associado à atividade específica calculado a partir da Equação 3.1 foi estimado utilizando a propagação de erros, de acordo com a Equação 3.2.

$$\delta A^{2} = \left(\frac{1}{\varepsilon \cdot P_{\gamma} \cdot m \cdot t}\right)^{2} \cdot \delta N_{L}^{2} + \left(\frac{N_{L}}{\varepsilon^{2} \cdot P_{\gamma} \cdot m \cdot t}\right)^{2} \cdot \delta \varepsilon^{2} + \left(\frac{N_{L}}{\varepsilon \cdot P_{\gamma}^{2} \cdot m \cdot t}\right)^{2} \cdot \delta P_{\gamma}^{2}$$
(3.2)

Onde δA é a incerteza da atividade específica, δN_L a incerteza da área líquida fornecida pelo *Genie 2k*, $\delta \varepsilon$ a incerteza associada à eficiência de detecção fornecida pelo LabSOCS e δP_{γ} a incerteza da probabilidade de emissão do fóton de interesse de acordo com os dados do BIPM. Para este trabalho, os valores de massa e de tempo foram considerados absolutos.

3.6 Atividade Mínima Detectável (AMD)

O cálculo da atividade mínima detectável por unidade de massa de uma amostra, para uma dada linha de emissão gama, com certo nível de confiança definido pelo coeficiente k, é usualmente baseado na derivação de *Currie*, e está de acordo com as normas ISO 11929 e 10703. A fórmula utilizada para o cálculo da AMD é expressa pela Equação 3.3:

$$AMD(Bq/kg) = \frac{k^2 + \sqrt{8}.k.\sigma}{P_{\gamma} \cdot t(s) \cdot m(kg) \cdot \varepsilon}$$
(3.3)

Onde σ é o desvio padrão da radiação de fundo da blindagem mais o portaamostra medido por um tempo *t*, mesmo tempo de aquisição do espectro. O valor de *m* é o valor da massa da amostra, P_{γ} é a probabilidade de emissão de uma certa energia, e ε é a eficiência de detecção para esta energia. O nível de confiança *k* está relacionado ao percentual de medidas que estará fora de um intervalo definido a partir do valor médio. Para os valores de *AMD* calculados aqui, este percentual foi definido em 5%. Em outras palavras, 95% das medidas (k=1,96) vão estar dentro de 1,96 σ do valor médio (σ representa o desvio padrão da distribuição).

Foi calculado um valor de AMD de cada linha de emissão de interesse, em todas as amostras analisadas neste estudo.

3.7 Validação do sistema de detecção

A validação foi realizada utilizando fontes certificadas de três geometrias diferentes. Fontes pontuais e ampola com padrão líquido, ambas certificadas pelo Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI-IRD/CNEN) da Divisão de Metrologia (DIMET). E um padrão radioativo de ⁴⁰K em uma geometria de formato marinelli, certificada pela AMETEK/Ortec (SER: 16200494 – M: 934322).

O princípio básico para validação do sistema de detecção se dá a partir da comparação dos valores de eficiência de cada energia de emissão gama determinados experimentalmente e calculados pelo LabSOCS.

Para calcular o valor da eficiência de detecção experimental, é necessário saber qual a contagem gama do detector para uma certa energia (ε_1). Essa medida foi feita em um tempo aproximado de 15 minutos, suficiente para que a incerteza da área atingisse valor inferior a 0,5%. Posteriormente, utilizando as equações que regem o decaimento radioativo (Equação 2.1) e o valor de atividade, foi estimado o número de emissões do radionuclídeo, para aquela energia, para aquele intervalo de tempo estabelecido anteriormente (ε_2). O valor da eficiência de detecção experimental dar-se-á pela razão $\varepsilon_1/\varepsilon_2$. Para o cálculo da eficiência simulada, foi utilizada a metodologia discutida na seção 3.4. A diferença percentual entre os valores simulados e experimentais, deu-se de acordo com a Equação 3.4.

$$D = \frac{E_{LabSOCS} - E_{exp.}}{E_{exp.}} \times 100$$
(3.4)

3.8 Preparação das amostras

Todo processo de preparação das amostras, local de repouso para as amostras atingirem o equilíbrio secular, bem como o levantamento dos espectros de emissão gama foram feitos no Laboratório de Análise Ambiental e Simulação Computacional do Programa de Engenharia Nuclear da Universidade Federal do Rio de Janeiro (LAASC/PEN/UFRJ).

As amostras foram coletadas no comércio varejista do estado do Rio de Janeiro, entre o período de junho de 2015 a outubro de 2016. A escolha foi feita de acordo com os dados do IBGE (2011), que publicou a relação dos alimentos mais consumidos pela população fluminense. Dentre as diversas marcas possíveis para um determinado alimento, seja este cereal, grãos, leite, enlatados, etc, foram escolhidas as marcas mais comercialmente conhecidas. Para secagem das amostras foi utilizado uma estufa da marca Quimis modelo Q317B-12 a uma temperatura média de 75°C. As amostras foram consideradas desumidificadas quando a taxa de variação mássica tendeu a zero. Para aferir a massa uma balança da marca Gehaka, modelo BG 4000 com resolução de centésimos de grama foi utilizada.

Segue os procedimentos adotados para preparação das amostras:

3.8.1 Grãos

As amostras de grãos (seção 4.2) foram cuidadosamente manuseadas para evitar contaminações externas. Depois de abrir as embalagens originais, as amostras foram trituradas em um moedor manual (Figura 16-a), previamente higienizado. Depois de trituradas, as amostras foram peneiradas em uma tela de 16 *mesh* a fim de obter uma característica homogênea. A massa foi aferida (peso fresco) e posteriormente passou-se

o processo de secagem. Após atingir taxa mássica nula (peso seco), as amostras foram colocadas cuidadosamente, sem compactações, em recipientes de polipropileno (Figura 16-b). As embalagens foram lacradas e mantidas em repouso durante, no mínimo, trinta e cinco dias, a fim de alcançar a condição de equilíbrio secular.



Figura 16. Em (a) o triturador manual e em (b) os porta-amostras utilizados no trabalho.

3.8.2 Frutas, legumes e folhagens

Essas amostras (seções 4.3, 4.4 e 4.5) foram adquiridas entre o mês de maio de 2015 a dezembro de 2015. Após coleta, as amostras foram lavadas em água corrente e depois secas com um tecido limpo. Para as frutas e legumes, ainda foi feito o trabalho de retirada da casca utilizando um descascador simples, capaz de retirar um filete com espessura menor que um milímetro. Foi utilizado um processador (Figura 17) previamente higienizado para triturar as amostras.



Figura 17. Processador utilizado na trituração de frutas, legumes e verduras.

O resultado deste processo foi o sumo utilizado na espectrometria. Para cada vez em que o processador foi utilizado, tinha-se o cuidado de lavá-lo com água corrente e sabão neutro. Secava-o inicialmente com pano limpo e finalmente toda umidade restante era retirada utilizando fonte de ar quente.

Depois de obter o sumo, aferiu-se a massa (peso fresco) e posteriormente as embalagens foram lacradas com solda plástica. As amostras foram deixadas em repouso por no mínimo trinta e cinco dias, em um ambiente com baixo nível de variações de temperatura, a fim de alcançar o equilíbrio secular.

Por causa do excesso de água que compõe as amostras de frutas, legumes e folhagens, podendo chegar a 95% de umidade (NEPA, 2011), foi decidido que para esse tipo de amostra seria obtido o espectro de emissão gama para peso fresco, sem qualquer desumidificação. Esse procedimento em nada inviabiliza o procedimento para cálculo de atividade específica, apenas diminui a taxa de contagem, visto que muitos fótons são atenuados na própria amostra. No entanto, como a energia mínima usada para nosso estudo foi de 238,6 keV do ²¹²Pb, a atenuação não chega ser significativa (KAMINSKI, 2014).

3.8.3 Carne

A amostra de carne foi previamente triturada em moedor comercial. Posteriormente, passou-se o processo de secagem em estufa a uma temperatura de 60°C. Após a taxa de variação mássica tender a zero, a amostra foi triturada novamente em moedor simples (Vide Figura 16-a). O resultado deste processo foi uma farinha utilizada na espectroscopia. Depois de acondicionada no porta-amostra e devidamente lacrada, a amostra ficou em repouso por durante, no mínimo, trinta e cinco dias em ambiente com baixo nível de variações de temperatura, a fim de alcançar a condição de equilíbrio secular.

3.8.4 Diversos

As amostras sólidas (seção 4.6) foram trituradas segundo procedimento adotado na seção 3.8.1. Já as amostras líquidas e as amostras em pó (leite, achocolatado, etc.) foram colocadas diretamente nos porta amostras previamente higienizado sem qualquer tratamento químico. As amostras gaseificadas, como refrigerante, foram deixadas com suas embalagens semiabertas de maneira que o gás pudesse escapar antes de serem colocadas em porta amostras.

A metodologia utilizada para levantar a curva de eficiência para este trabalho (discutido na seção 3.4) permitiu uma maior flexibilidade no momento da preparação das amostras. Para diferentes quantidades pode-se utilizar diferentes porta amostras. Efeitos de auto atenuação devido às diferentes densidades não foram um impasse, sequer precisou utilizar um fator de correção, pois o modelo matemático proposto pelo programa permite a correção destas diferenças.

3.9 Estimativa de dose

O consumo anual de alimentos da Região Sudeste do Brasil foi obtido nos dados disponíveis na publicação *Análise do Consumo Alimentar Pessoal no Brasil* IBGE (2011). A dose efetiva anual de radionuclídeos nos alimentos foi calculada utilizando Equação 3.5

$$D_{ef} = D_f \ x \ U \ x \ C_d \ x \ d \tag{3.5}$$

Onde: D_{ef} corresponde a dose efetiva anual ($\mu Sv.ano^{-1}$);

 D_f é o coeficiente de dose publicado pela ICRP 119 (Sv.Bq⁻¹);

U é a quantidade de alimento consumido em um ano (kg);

 C_d a concentração específica do radionuclídeo no alimento ($Bq.kg^{-1}$);

d é a razão entre a massa seca e a massa úmida (d < 1).

CAPÍTULO 4 Resultados e Discussões

Nas seções seguintes serão apresentados os resultados obtidos e também as discussões para o presente trabalho. A Seção 4.1 destina-se aos resultados da calibração em energia e dos resultados dos ajustes entre os valores de eficiência de detecção obtidos experimentalmente com os valores de eficiência de detecção obtidos com o LabSOCS. Da Seção 4.2 até a Seção 4.6 são apresentados os resultados da concentração específica obtidos por espectrometria gama para diversos tipos de alimentos, as comparações dos resultados com outros autores e a discussões dos dados. E finalmente, a Seção 4.7 apresenta os valores de dose efetiva para ingestão de alimentos.

4.1 Curvas de ajustes

A calibração em energia foi realizada com o auxílio do programa *Gamma Analysis* do Genie 2000, que relaciona a informação obtida pelo analisador multicanal (DSA 1000) com unidades de energia, por meio de um ajuste linear para o caso de duas linhas de energia, ou através de um ajuste quadrático caso três ou mais linhas de energia sejam utilizadas. A curva de ajuste em energia foi feita utilizando fontes radioativas certificadas junto ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD / CNEN). O ajuste quadrático foi feito utilizando 14 pontos experimentais de acordo com a Tabela 3.

Energia (keV)	Canal	Energia (keV)	Canal
59,5	245	383,9	1574
80,9	333	511	2094
86,5	356	661,7	2712
105,3	433	1173,2	4812
276,4	1133	1274,5	5225
302,8	1242	1332,5	5465
356	1460	1460,8	5989

Tabela 3. Pontos experimentais utilizado para ajuste quadrático em energia

Na Figura 18 é mostrado o ajuste dos pontos experimentais utilizados no ajuste em energia. A Equação 4.1 representa a relação entre canal e energia para todo o espectro utilizado nesse trabalho.

$$y = 0,24x - 0,13 \tag{4.1}$$

A energia corresponde ao eixo das ordenadas enquanto o canal corresponde ao eixo das abcissas. O coeficiente de determinação do ajuste é de R²=0,99.



Figura 18. Ajuste em energia para espectrometria gama.

A validação da curva de eficiência calculada pelo LabSOCS foi realizada por meio da comparação com curvas de eficiência obtidas experimentalmente por fontes puntiformes, e por uma ampola contendo uma solução líquida (certificado: C/036/A15), ambas produzidas pela Divisão de Metrologia (DIMET) do Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes (LNMRI/IRD/CNEN). Ainda foi utilizado um becker marinelli contendo uma fonte de ⁴⁰K, produzida pela AMETEK/Ortec (SER: 16200494 – M: 934322).

Na Figura 19 é mostrado o espectro em energia da radiação gama produzida pelos radionuclídeos contidos na solução líquida e a curva de eficiência calculada no *Geometry Composer* através do LabSOCS.



Figura 19. Espectro e curva de eficiência gerados com o uso de fonte padrão produzida pelo LNMRI – IRD/CNEN



Figura 20. Comparação das eficiências determinadas experimentalmente com uso de fontes puntiformes e calculadas pelo LabSOCS.

Na Figura 20 é mostrado o ajuste entre as eficiências calculadas pelo LabSOCS e obtidas experimentalmente para fontes puntiformes. A região de interesse mostrada no gráfico corresponde à faixa de energia estudada nesse trabalho. (⁴⁰K: 1460,8 keV; ²¹⁴Bi: 1120,3 keV; ²²⁸Ac: 911,1 keV; ²¹²Pb: 238,6 keV; ¹³⁷Cs: 661,7 keV).

Na Figura 21 é mostrada as diferenças percentuais para as sete linhas de emissão gama apresentadas na Figura 20. A máxima diferença percentual foi de 7,4% para emissão de 384 keV do ¹³³Ba. Todas as outras diferenças percentuais ficaram abaixo de 4,1%



Figura 21. Diferença percentual entre os valores de eficiência calculados pelo LabSOCS e determinados experimentalmente para fontes puntiformes.

De maneira análoga, foi feita uma comparação da eficiência calculada pelo LabSOCS e determinada experimentalmente para uma geometria volumétrica em formato cilíndrico (ampola). A Figura 22 mostra o comportamento dos valores experimentais com os valores calculados pelo LabSOCS.

Na Figura 23 é mostrada as diferenças percentuais para as nove linhas de emissão gama apresentadas na Figura 22. A máxima diferença percentual foi de 13,3% para emissão de 383 keV do ¹³³Ba. Exceto para esta energia, todas as outras diferenças percentuais ficaram abaixo de 7,1%



Figura 22. Comparação das eficiências para geometria volumétrica calculadas experimentalmente e calculadas pelo LabSOCS



Figura 23. Diferença percentual entre o valor de eficiência calculado pelo LabSOCS e determinado experimentalmente para geometria volumétrica.

A diferença percentual que aparece nas Figuras 21 e 23 na energia de 383 keV do ¹³³Ba pode ser explicada pelo fato desta energia ser resultado de uma soma simples de duas outras linhas de emissão deste mesmo radionuclídeo. São elas: 160,6 e 223,2

keV (com probabilidades de emissão de 0,64 e 0,45%, respectivamente), e principalmente 80,9 e 302,8 keV (com probabilidades de emissão de 84,1 e 18,3%, respectivamente). Portanto, como na curva simulada não existe o efeito soma, a eficiência calculada pelo LabSOCS sempre será menor para esta energia, visto que haverá mais contagens no procedimento experimental.

Pode-se perceber que existe uma tendência de uma diferença percentual maior que 5% quanto maior for a energia de emissão gama quando se trata da geometria cilíndrica. Essa diferença percentual (> 5%) não foi notada na comparação das curvas de eficiência feita para fontes pontuais (Figura 20 e Figura 21).

Em uma terceira análise foi utilizado um marinelli com material sólido contendo ⁴⁰K, cuja energia de emissão é de 1460,8 keV. Comparou-se as eficiências calculada pelo LabSOCS e obtida pelo método experimental, a diferença percentual não excedeu 2,33% (Tabela 4).

Tabela 4. Diferença percentual entre os valores de eficiência calculado pelo LabSOCS e
determinado experimentalmente para padrão marinelli.

Elemento	Energia	Eficiência	Eficiência	Diferença
	(keV)	experimental	LabSOCS	percentual
⁴⁰ K	1460,8	0,00506	0,00494	-2,33

A intenção de avaliar a curva de eficiência gerada pelo LabSOCS para três geometrias diferentes foi garantir que, dentro das condições possíveis para o LAASC/UFRJ, utilizando uma mesma metodologia experimental a curva se ajusta para geometrias diferentes. Isto porque diferentes geometrias foram simuladas no LabSOCS para obter curvas de eficiência para as amostras analisadas neste trabalho. O uso de um único porta-amostra não foi possível devido à dificuldade de obter grandes volumes para algumas amostras, como por exemplo casca de frutas. Portanto, a avaliação das curvas de eficiência geradas pelo LabSOCS para diversas geometrias garante, minimamente, que os valores de concentração específica são confiáveis.

Apesar das restrições geométricas, visto que foram analisadas três geometrias diferentes dentre as diversas geometrias possíveis de simular no LabSOCS, esses dados apontam para uma confiabilidade na eficiência calculada pelo programa. De uma maneira geral, a diferença percentual teve uma média de 3,2% sendo o valor mínimo de 0,9 % e valor máximo de 7,1 %, com excessão da energia 383 keV do ¹³³Ba.

Outro fator que ajuda a garantir a confiabilidade dos resultados, é que desde 2017 o LAASC/UFRJ participa do Programa Nacional de Intercomparação de Resultados de Análise de Amostras Ambientais para Determinação de Radionuclídeos, promovido pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD). Este programa de intercomparação conferiu ao LAASC/UFRJ o bom desempenho analítico em suas medidas, com desvios menores que 2%.

Também foi estudado o ajuste da curva de eficiência quando a densidade das amostras é alterada, visto que diversas amostras das mais variadas densidades foram analisadas. A intenção foi mostrar se o ajuste entre a curva de eficiência calculada via LabSOCS e obtidas experimentalmente mantém-se confiável em outras faixas de densidade que não seja aquela dos padrões radioativos utilizados no presente trabalho (Lopes, 2017).

4.2 Cereais

Na alimentação da população do Estado do Rio de Janeiro, o arroz corresponde a um consumo de 175,6 g/dia. Neste quesito o arroz só perde para o feijão, que tem um consumo diário de 218,1 g/dia (IBGE, 2011). Esses dois cereais são os alimentos mais consumidos pela população do Rio de Janeiro. O fubá, geralmente consumido em forma de polenta, também foi analisado, além da farinha de mandioca crua, geralmente utilizada como acompanhamento em diversos pratos.

Na Tabela 5 é mostrado os valores de referência da UNSCEAR (2000) para radionuclídeos das séries do Urânio e Tório para grãos. Serão discutidos os resultados encontrados neste trabalho e em paralelo os valores serão comparados com outros trabalhos encontrados na literatura.

Tabela 5. Valores de referência da UNSCEAR (2000) para grãos, em mBq.kg⁻¹.

²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
80	60	3

A Tabela 6 mostra a concentração específica dos radionuclídeos em amostras de cereais. Pode-se perceber que todas as amostras tiveram quantidade mensurável de ⁴⁰K para o presente trabalho. O feijão preto aparece como o produto de maior concentração

específica para este radionuclídeo, (489,36 \pm 23,70) Bq.kg⁻¹, superando a atividade específica apresentada pela farinha de mandioca (91,78 \pm 5,02) Bq.kg⁻¹ em quase cinco vezes. VENTURINI (1999) ao analisar amostras de feijão, quantificou (434 \pm 21) Bq.kg⁻¹, uma diferença percentual em valores médios de 12,8%.

O arroz, um dos cereais mais consumidos, apresentou a concentração específica de ⁴⁰K mais modesta entre os cereais, $(19,36 \pm 5,29)$ Bq.kg⁻¹. VENTURINI (1999) em sua análise quantificou a concentração específica em $(14,7 \pm 0,7)$ Bq.kg⁻¹ enquanto SCHEIBEL (2007) teve concentração específica de (56 ± 2) Bq.kg⁻¹.

O radionuclídeo ²²⁸Ra teve uma concentração específica quantificável em quase todas as amostras do presente trabalho. Quando se compara as concentrações específicas do ²²⁸Ra para o feijão, não há divergências entre os valores quantificados pelos autores, com valores de concentração específica dentro da margem de erro.

Vale destacar que a resolução do método proposto por LAURIA (2002) a partir da contagem alfa e beta total, consegue quantificar valores de concentração específica abaixo da AMD obtida na espectrometria gama. Quanto aos valores de referência propostos por UNSCEAR (2000) apresentados na Tabela 5, estes estão muito abaixo dos valores mensurados neste trabalho para cereais.
Cereais	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Arroz	19,36 ± 5,29				
Farinha mandioca	91,78 ± 5,02		$2,13 \pm 0,75$	$1,09 \pm 0,17$	-
Feijão carioquinha	483,26 ± 22,98		3,38 ± 1,07	< 1,39	Presente trabalho
Feijão Preto	489,36 ± 23,70	$5,40 \pm 1,39$	$3,54 \pm 1,07$		_
Fubá	54,81 ± 6,80		$2,60 \pm 0,73$		_
Arroz	$14,7 \pm 0,7$				VENTURINI 1999
Feijão	434 ± 21	$0,75 \pm 0,15$	$2,0 \pm 0,4$		
Arroz		$(11 \pm 2).10^{-3}$	$(20 \pm 2, 1).10^{-3}$		
Farinha de mandioca		$(570 \pm 1,5).10^{-3}$	$(3760 \pm 1, 2).10^{-3}$		LAURIA, 2002
Feijão		$(600 \pm 1,27).10^{-3}$	$(1500 \pm 2,2).10^{-3}$		_

Tabela 6. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de cereais $(Bq.kg^{-1})$ *

Tabela 8 (continuação)
------------	--------------

Cereais	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Arroz	56 ± 2				
Farinha mandioca	121 ± 4		$0,7 \pm 0,2$		SCHEIBEL, 2007
Fubá	54 ± 1				

4.3 Frutas

Para o presente trabalho foram escolhidas as frutas mais consumidas pela população do estado do Rio de Janeiro, segundo IBGE (2011). Além disso, resolveu-se estudar as concentrações específicas das variedades de uma mesma fruta.

Os valores de referência da UNSCEAR (2000) para concentração específica de ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²²⁸Th em frutas são apresentados na Tabela 7.

Tabela 7. Valores de referência da UNSCEAR (2000) para frutas e raízes, em mBq.kg⁻¹

²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
30	20	0,5

A Tabela 8 mostra os resultados das concentrações específicas das frutas analisadas neste trabalho e um paralelo das concentrações específicas disponíveis na literatura. Dentre os radionuclídeos estudados, o ⁴⁰K foi o único com concentração específica mensurável em todas as amostras. A fruta que apresentou maior concentração específica de ⁴⁰K foi a banana d'água, com (129,96 ± 7,08) Bq.kg⁻¹. A menor concentração específica aferida para mesmo radionuclídeo foi na pera portuguesa com (27,70 ± 2,84) Bq.kg⁻¹. O ²²⁶Ra teve quantidade mensurável de concentração específica em 10% das amostras, a laranja lima com (3,50 ± 0,69) Bq.kg⁻¹ teve maior valor aferido. Com proporções parecidas, ²²⁸Ra apresentou-se mensurável em 15% das medidas, tendo maior valor (1,63 ± 0,34) Bq.kg⁻¹ conferido à pera portuguesa. ²²⁸Th foi aferido em 35% das medidas, sendo o maior valor de concentração específica de (1,63 ± 0,26) Bq.kg⁻¹

Frutas	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Abacaxi	49,00 ± 5,16				
Banana d'água	129,96 ± 7,08				_
Banana da terra	$106,74 \pm 7,52$	$1,27 \pm 0,36$			
Banana prata	92,42 ± 5,89			$1,63 \pm 0,26$	
Laranja bahia importada	56,52 ± 5,88	<2,58			 Presente trabalho
Laranja bahia nacional	55,37 ± 6,33		1,51 ± 0,31		
Laranja lima	71,53 ± 7,15	3,50 ± 0,69			
Laranja pera	52,83 ± 6,13				
Laranja pomelo	$44,23 \pm 5,50$				
Laranja seleta	63,40 ± 6,79		0,31 ± 0,14		_

Tabela 8. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de frutas (Bq.kg⁻¹) *

Frutas	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Maçã fugi	39,06 ± 3,06			1,37 ± 0,21	
Maçã gramy	48,16 ± 3,70			0,84 ± 0,19	
Maçã red argentina	47,03 ± 3,55			0,63 ± 0,15	
Mamão formosa	83,09 ± 5,53		<1,20	<0,62	
Mamão havaí	62,15 ± 4,22			<0,50	
Melancia	37,08 ± 5,27	<2,61	<2,13		— Presente trabamo
Pera asiática	$53,26 \pm 4,00$			0,98 ± 0,20	
Pera danjour	48,12 ± 3,63		<0,98	0,92 ± 0,19	
Pera portuguesa	27,70 ± 2,84		1,63±0,34	$1,33 \pm 0,24$	
Pera willians	48,79 ± 3,76		<1,04		

Tabela 8 (Continuação)

Tabela 8	(Continuação)
----------	---------------

Frutas	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Abacaxi	39,7 ± 1,7				
Banana	106 ± 8				
Laranja	$45,9 \pm 2,0$		$0,\!70\pm0,\!08$		VENTURINI 1999
Maçã	$36,3 \pm 1,7$				
Melancia	$26,0 \pm 1,2$		0,18 ± 0,03		
Рарауа	43,1 ± 1,9		$1,55 \pm 0,09$		
Banana		17.10-3	18.10-3		LAURIA 2002
Laranja		21.10-3	48.10-3		
Maçã		14,7 ± 1,0		$3,78 \pm 0,69$	PIETRZAK-FLIS, 1997-1

Pode-se notar que não houve uma variação significativa da concentração específica quando se compara as análises feitas para variedades diferentes de uma mesma fruta. Dentre as possíveis comparações, visto que alguns radionuclídeos não apresentaram quantidades mensuráveis de concentração específica, tem-se o ²²⁸Th que aparece nas três variedades de maçã analisadas neste trabalho, cuja concentração específica variou do valor mínimo de 0,48 Bq.kg⁻¹ até o valor máximo de 1,58 Bq.kg⁻¹. Nas três amostras de pera em que pôde-se aferir o ²²⁸Th, os valores coincidem dentro da margem de erro.

Por outro lado, devido à concentração específica mensurável do ⁴⁰K em todas as amostras, pôde-se analisar como este radionuclídeo concentra-se nas variedades de uma mesma fruta. A Figura 24 mostra os valores aferidos de concentração específica do ⁴⁰K para as variedades de frutas mostradas na Tabela 8.



Figura 24. Comparação das concentrações específicas de ⁴⁰K para variedades de frutas.

Pode-se observar na Figura 24 que não há grandes diferenças de concentrações específicas de ⁴⁰K entre as amostras analisadas para variedades de uma mesma fruta. As maiores discordâncias ficam para pera portuguesa e para banana d'água, que

apresentaram valores de concentração específica menores e maiores que outras variedades analisadas, respectivamente. As concentrações específicas das duas amostras de mamão não apresentaram valores que coincidissem sequer na margem de erro.

Quando se compara os resultados do presente trabalho com os valores de referência da UNSCEAR (2000), pode-se afirmar que aqueles são bem maiores. No entanto, quando se compara com os valores disponíveis na literatura, existem algumas diferenças a serem analisadas.

LAURIA (2002) utilizando espectrometria alfa e beta, obteve valores de concentração específica para ²²⁶Ra na laranja (variedade não declarada) de 0,021 Bq.kg⁻¹. No presente trabalho, a variedade com concentração específica mensurável de ²²⁶Ra foi a laranja lima com (3,50 \pm 0,69) Bq.kg⁻¹. De maneira similar, LAURIA (2002) aferiu 0,048 Bq.kg⁻¹ de ²²⁸Ra na laranja (variedade não declarada), no presente trabalho foi aferido (1,51 \pm 0,31) Bq.kg⁻¹ para laranja bahia nacional e (0,31 \pm 0,14) Bq.kg⁻¹ para laranja seleta. Portanto, de maneira geral, considerando que não há grandes flutuações de concentração específica entre as variedades de uma mesma fruta, os valores determinados neste trabalho para ²²⁶Ra e ²²⁸Ra são bem maiores que os valores obtidos por LAURIA (2002).

PIETRZAK-FLIS (1997-1) ao analisar a concentração específica de ²²⁸Th em frutas, aferiu (3,78 \pm 0,69) Bq.kg⁻¹ para maçã em uma determinada região da Polônia. No presente trabalho, o valor máximo medido de ²²⁸Th foi de (1,37 \pm 0,21) Bq.kg⁻¹ para maçã fugi.

Para o ⁴⁰K, os valores médios de literatura de VENTURINI (1999) são comparados na Tabela 9 com os valores médios aferidos no presente trabalho. Todas as amostras de frutas analisadas por VENTURINI (1999) apresentaram valores de concentração específica menores que os valores aferidos no presente trabalho. A maior diferença percentual entre os valores medidos é para o mamão papaya, com uma discrepância de 44,2%.

Estudos mostram que, de forma geral, as cascas de frutas e legumes possuem mais nutrientes que as polpas (GONDIM, 2005; CÓRDOVA, 2005). A absorção de nutrientes a partir do solo depende de diversos fatores como tipo de solo, vegetação local, condições ambientais e principalmente das aplicações de fertilizantes em forma de adubo e fertilizantes do tipo foliar (MEDINA, 2013). Portanto decidiu-se analisar a concentração específica dos radionuclídeos de interesse nas cascas das frutas e legumes (Tabelas 10 e 14, respectivamente) cujas polpas foram submetidas à espectrometria

gama. Posteriormente discute-se os resultados encontrados. Não foram encontrados na literatura algum tipo de estudo comparativo entre a concentração específica de radionuclídeos presentes na polpa e na sua respectiva casca.

Frutas	Atividade média presente trabalho	Atividade VENTURINI (1999)	Diferença percentual (%)
Abacaxi	49,00	39,7	23,4
Banana	109,7	106	3,5
Laranja	56,19	45,9	22,4
Maçã	44,75	36,3	23,3
Melancia	37,08	26,0	42,6
Papaya	62,15	43,1	44,2

Tabela 9. Comparação das concentrações específicas em Bq.kg⁻¹ de ⁴⁰K com VENTURINI (1999)

A Tabela 10 mostra a concentração específica dos radionuclídeos ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²⁸Th para as cascas das frutas apresentadas na Tabela 8, com exceção da maçã gramy e da laranja bahia importada cujas amostras de cascas foram consideradas insuficientes para análise espectrométrica.

Casca de frutas	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
Abacaxi	77,92 ± 8,70			<1,32
Banana d'água	206,38 ± 11,28			$0,71 \pm 0,26$
Banana da terra	280,17 ± 16,00		<2,68	
Banana prata	$200,41 \pm 10,77$	$2,37 \pm 0,80$		<0,59
Laranja bahia nacional	$113,36 \pm 13,41$			
Laranja lima	$110,05 \pm 16,56$		<5,52	<1,93
Laranja pera	$179,39 \pm 19,06$			<2,69
Laranja pomelo	$192,89 \pm 15,20$			
Laranja seleta	$134,14 \pm 12,57$	<4,94	<2,82	<1,63
Maçã fugi	58,99 ± 14,65	<9,37	<5,34	
Maçã red				

Tabela 10. Concentração específica em cascas de frutas $(Bq.kg^{-1}) *$

Tabela 10 (Continuação)

Casca de frutas	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
Mamão formosa	$248,46 \pm 27,50$	$13,14 \pm 4,06$		3,91 ± 1,20
Mamão havaí	255,80 ± 23,60	<6,47		<2,19
Melancia	115,37 ± 8,17	5,31 ± 1,48	$3,03 \pm 0,78$	
Pera asiática	$372,03 \pm 52,40$	<26,87		
Pera Danjour	65,26 ± 13,17			$1,99 \pm 0,70$
Pera portuguesa	64,82 ± 20,55		<8,23	4,58 ± 1,39
Pera willians	63,30 ± 13,33	<5,16	<4,96	$1,80 \pm 0,70$

Na Tabela 8 pode-se perceber que o ²²⁶Ra apresentou quantidade mensurável em apenas duas amostras de polpa, na banana da terra e na laranja lima, que corresponde um total de 10% do total das amostras. Por outro lado, quando foi analisado as cascas dessas frutas, a Tabela 10 mostra que em 16% das amostras teveram quantidades mensuráveis e em 28% valores abaixo da AMD para ²²⁶Ra. As polpas que apresentaram valores mensuráveis de ²²⁶Ra não apresentaram valores mensuráveis de ²²⁶Ra não apresentaram valores mensuráveis de ²²⁶Ra em suas cascas.

O ²²⁸Ra apresentou-se mensurável em 15% das medidas e em 20% das medidas a concentração específica de ²²⁸Ra ficou abaixo da AMD nas amostras de polpa. Já nas cascas, apenas a melancia apresentou quantidade mensurável de ²²⁸Ra, enquanto 33% das medidas tiveram valores abaixo da AMD. Mais uma vez, as polpas que apresentaram valores mensuráveis de ²²⁸Ra não apresentaram valores mensuráveis de ²²⁸Ra em suas cascas.

Nas amostras analisadas, ²²⁸Th apresentou-se mensurável em 35% das polpas e 10% das medidas ficaram abaixo do LMD. Já nas cascas, 28% das amostras tiveram quantidades mensuráveis, enquanto 33% das medidas ficaram abaixo da AMD. Além do ⁴⁰K, o radionuclídeo que teve valores mensuráveis tanto no fruto quanto na sua respectiva casca, foi o ²²⁸Th. Pera danjour (0,92 ± 0,19) Bq.kg⁻¹ e pera portuguesa (1,33 ± 0,24) Bq.kg⁻¹ tiveram atividades mensuráveis na polpa e em suas respectivas cascas, (1,99 ± 0,70) e (4,58 ± 1,39) Bq.kg⁻¹. A pera danjour apresentou um aumento de 116%, enquanto para pera portuguesa um aumento de 244% em seus valores médios, quando comparamos a concentração específica do ²²⁸Th na polpa da fruta e a concentração específica do ²²⁸Th na casca.

O ⁴⁰K apresentou quantidade mensurável de concentração específica em todas as amostras analisadas, exceto na casca de maça red. Portanto, foi possível comparar a concentração de específica de ⁴⁰K da polpa e da casca em 17 amostras de frutas (Tabela 11)

Frutas	Diferença percentual (%)
Abacaxí	59,0
Banana d'água	58,8
Banana da terra	162,5
Banana prata	116,8
Laranja bahia nacional	104,7
Laranja lima	53,9
Laranja pera	239,6
Laranja pomelo	336,1
Laranja seleta	111,6
Maçã fugi	51,0
Mamão formosa	199,0
Mamão havaí	311,6
Melancia	211,1
Pera asiática	598,5
Pera Danjour	35,6
Pera portuguesa	134,0
Pera willians	29,7

Tabela 11. Diferença percentual entre a concentração específica de ⁴⁰K na casca e na polpa.

A maior diferença percentual de concentração específica para ⁴⁰K na casca e na polpa foi verificada na pera asiática, 598,5%, e a menor 29,7% para pera willians. Inclusive, pode-se notar que a pera apresentou a maior variância entre os desvios percentuais quando se analisa as variedades de frutas. Entre as variedades de laranja, a maior diferença percentual ficou por conta da laranja pomelo e, entre as variedades de bananas, a banana da terra apresentou maior diferença percentual. Pode-se notar, de

acordo com os dados disponíveis neste trabalho, a inviabilidade de prever diferenças percentuais entre as concentrações específicas das polpas e cascas. No caso das frutas, notou-se que as maiores diferenças percentuais estão diretamente relacionadas à alta concentração específica de ⁴⁰K na casca, visto que para uma mesma fruta não há grandes variações na concentração específica de ⁴⁰K na polpa, conforme mostrado na Figura 24.

4.4 Legumes

Foram escolhidos os legumes mais consumidos pela população do estado do Rio de Janeiro (IBGE, 2011). As amostras foram obtidas no comércio varejista acessível à população. Na Tabela 12 encontram-se os valores de concentração específica de radionuclídeos naturais encontrados em legumes (polpa).

Pode-se observar que as maiores concentrações de ⁴⁰K encontram-se nas raízes (beterraba, mandioca, cenoura e batata). Essa característica é devido à função principal das plantas tuberosas, que armazenam os nutrientes dentro das raízes. Por outro lado, nos legumes que não se desenvolvem sob o solo não foram observadas variações significativas da concentração de ⁴⁰K.

Amostras	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Abóbora	$134,79 \pm 10,05$	$7,82 \pm 1,09$			
Batata	119,34 ± 7,38	$2,64 \pm 1,05$			
Beterraba	$266,33 \pm 13,90$	$1,90 \pm 0,44$	$9,58 \pm 0,80$	$2,43 \pm 0,48$	
Cenoura	119,25 ± 7,98	<2,62	30,18 ± 1,99	$1,99 \pm 0,43$	 Presente trabalho
Chuchu	61,02 ± 6,25	<2,57			
Mandioca	$178,55 \pm 10,89$	<3,72	<1,96		
Pepino	58,18 ± 5,72		$0,75 \pm 0,19$		
Tomate	59,57 ± 5,18		< 1,31		
Batata		2,0 ± 0,2		$0,50 \pm 0,09$	
Beterraba		$0,34 \pm 0,02$		$0,09 \pm 0,01$	DIETRZAK ELIS 1007 1
Cenoura		$1,4 \pm 0,1$		$0,23 \pm 0,03$	1 ILTRZAR-1 LIS, 1997-1
Tomate		$0,040 \pm 0,005$		0,013 ± 0,003	

Tabela 12. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de legumes (Bq.kg⁻¹) *

Tabela 12 (Continuação)	
-------------------------	--

Amostras	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Batata	104 ± 5				
Cenoura	69,7 ± 2,4	$1,77 \pm 0,07$	4,10 ± 0,16		_
Chuchu	39,5 ± 1,4				- VENTUDDU 1000
Mandioca	120 ± 6		$1,14 \pm 0,11$		VENTOKINI, 1999
Pepino	29,3 ± 1,3				_
Tomate	59,4 ± 3,8				_
Batata		$(11,4\pm0,13).10^{-3}$			
Beterraba		$(53,7 \pm 19,7).10^{-3}$			— PIETR74K-FLIS 1997-2
Cenoura		$(40 \pm 12).10^{-3}$			
Tomate		$(12,0\pm3,8).10^{-3}$			_
Mandioca	83	1,30	0,80		ELE ABIAMA, 2012

Tabela 12 (Contine	ıação)
--------------------	--------

Amostras	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Abóbora		0,032	0,110		
Aipim		$0,300 \pm 0,004$	$1,200 \pm 0,004$		
Batata		$0,023 \pm 0,002$	$0,081 \pm 0,002$		
Cenoura		$0,146 \pm 0,002$	$0,694 \pm 0,001$		LAUNIA, 2002
Chuchu		$0,020 \pm 0,005$	$0,060 \pm 0,002$		
Tomate		$0,157 \pm 0,003$	$0,158 \pm 0,002$		

Abóbora, batata e beterraba apresentaram quantidades mensuráveis de concentração específica para ²²⁶Ra. O legume com maior concentração específica de ²²⁶Ra foi a abóbora com (7,82 \pm 1,09) Bq.kg⁻¹, três vezes maior que a concentração específica da batata, que em se tratando de valores médios, corresponde a segunda maior.

Beterraba, cenoura e pepino apresentaram quantidades mensuráveis de concentração específica para ²²⁸Ra. A maior concentração específica corresponde à cenoura com ($30,18 \pm 1,99$) Bq.kg⁻¹. A beterraba tem a segunda maior concentração específica com ($9,58 \pm 0,80$) Bq.kg⁻¹, três vezes menor, em se tratando dos valores médios.

Beterraba e cenoura foram os únicos legumes que apresentaram valores de concentração específica mensuráveis de ²²⁸Th. Dentre os legumes e radionuclídeos analisados, pode-se afirmar que a beterraba é o legume mais radioativo, com um total de concentração específica de (280,24 \pm 15,62) Bq.kg⁻¹, quase duas vezes maior que o segundo colocado, cenoura com (151,42 \pm 10,4) Bq.kg⁻¹, em se tratando de valores médios. A Figura 25 mostra o espectro em energia dos fótons obtido para beterraba.



Figura 25. Espectro em energia dos fótons obtido para beterraba (Gamma analyse)

PIETRZAK-FLIZ (1997-1), utilizando processo de separação química e espectrometria alfa, obteve valores de atividade mensuráveis para cenoura e tomate, que no presente trabalho ficou abaixo da AMD. Os valores da concentração específica da batata coincidiram dentro da margem de erro, enquanto para beterraba, os valores do presente trabalho ficaram aproximadamente seis vezes maiores. Para o ²²⁸Th os valores aqui obtidos foram maiores que os valores obtidos pelo autor. A beterraba apresentou valor 27 vezes maior, enquanto a cenoura teve concentração específica aproximadamente 9 vezes maior.

Os valores obtidos por VENTURINI (1999) para ⁴⁰K foram menores que os valores obtidos no presente trabalho. A diferença percentual entre os valores médios pode ser analisada na Tabela 13. O pepino destaca-se por ser o legume de maior diferença percentual, 98,6%, enquanto o tomate coincidiu seus valores dentro da margem de erro. A concentração específica de ²²⁸Ra na cenoura foi 7,4 vezes maior no presente trabalho quando comparado com a medida de VENTURINI (1999).

Legumes	Atividade média presente trabalho (Bq.kg ⁻¹)	Atividade média Venturini (1999) (Bq.kg ⁻¹)	Diferença percentual (%)
Batata	119,34	104	14,7
Cenoura	119,25	69,7	71,0
Chuchu	61,02	39,5	54,5
Mandioca	178,55	120	48,8
Pepino	58,18	29,3	98,6
Tomate	59,57	59,4	0,3

Tabela 13. Comparação da concentração específica de ⁴⁰K na polpa de legumes com dados dispostos por VENTURINI (1999)

PIETRZAK-FLIS (1997-2), utilizando processo de separação química e espectrometria alfa, encontrou valores de concentração específica para ²²⁶Ra menores que a AMD do sistema de detecção usado no presente trabalho. Um detalhe importante a se destacar, são os diferentes valores de concentração específica que PIETRZAK-FLIS encontrou para o ²²⁶Ra, utilizando a mesma metodologia, quando estudou os

legumes do sudoeste da Polônia (PIETRZAK-FLIS, 1997-1) e do norte e nordeste daquele mesmo país (PIETRZAK-FLIS, 1997-2). Ao observar a Tabela 12, nota-se claramente as menores concentrações específicas de ²²⁶Ra nos legumes do norte e nordeste da Polônia (PIETRZAK-FLIS, 1997-2). Apenas o tomate apresentou valores de concentração específica na mesma ordem de grandeza. Esse resultado aponta para a possibilidade do solo do norte e nordeste da região ter menor concentração de radionuclídeos da cadeia do ²³⁸U, quando comparado com o solo do Sudoeste.

A concentração específica de ⁴⁰K na mandioca aferido por ELE ABIAMA, (2012) foi a metade do valor medido no presente trabalho. Os valores de concentração específica para ²²⁶Ra e ²²⁸Ra obtidos por LAURIA (2002) são inferiores à AMD do presente trabalho. Finalmente, os valores de concentração específica obtido para legumes são maiores que aqueles sugeridos pela UNSCEAR (2000), mostrado na Tabela 7.

A Tabela 14 mostra as concentrações específicas dos radionuclídeos estudados neste trabalho para a casca dos legumes analisados. Pode-se observar que os valores de concentração específica não são semelhantes aos valores apresentados na Tabela 12. Inicialmente pode-se destacar o aumento da concentração específica do ⁴⁰K na casca dos legumes que são produzidos com pouco ou nenhum contato com o solo. Abóbora, chuchu e pepino praticamente dobraram a concentração específica do ⁴⁰K. A concentração de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra aumentaram significativamente para beterraba e a cenoura, mas esse acréscimo não foi notado nas amostras de batata e mandioca, legumes cultivados em contato direto com o solo. Outra diferença significante foi o acréscimo na ordem de dez vezes na concentração específica do ²²⁸Th na casca da cenoura quando comparada com a concentração específica deste elemento na polpa do legume. Uma explicação possível está na alta concentração de ²³²Th no solo onde foi cultivado o legume.

Amostra (casca)	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
Abóbora	184,93±9,89	10,16±3,16	4,20±1,63	
Batata	176,96±11,85			
Beterraba	112,44±8,94	6,52±0,96	16,97±1,28	3,30±0,63
Cenoura	340,04±28,02	10,48±4,14	59,98±7,63	11,91±2,06
Chuchu	125,44±18,74			
Mandioca	105,99±14,07		6,39±1,92	
Pepino	133,07±14,70	11,88±1,98	6,02±0,99	

Tabela 14. Concentrações específicas para cascas dos legumes $(Bq.kg^{-1}) *$

Um agravante capaz de aumentar a concentração de ⁴⁰K na casca das frutas e legumes é o uso de fertilizantes tipo foliar, com alta concentração de potássio. Esse tipo de fertilizante tem finalidade de fornecer nutrientes necessários para evitar que folhagens e frutos tenham *clorose*, uma pigmentação acinzentada que caracteriza ausência de potássio no solo.

Nas análises feitas, apenas na amostra de abóbora foi detectado radionuclídeo artificial ¹³⁷Cs (Tabela 15). Foi observada uma maior concentração do radionuclídeo na casca do legume. A presença do radionuclídeo no interior do legume pode-se atribuir à facilidade de transporte do radionuclídeo para o interior das plantas (CARVALHO, 2005). Como não existe uma região predominante na produção de abóbora, tendo, portanto, produtores em quase todo brasil, acredita-se que a contaminação de ¹³⁷Cs não seja devida a uma restrição local, como Goiânia por exemplo, que tem radiação de fundo devido ao ¹³⁷Cs acima da média nacional. Mas acredita-se que a contaminação se deve, possivelmente, à aplicação de fertilizantes contaminados, principalmente àqueles importados de regiões como Rússia, visto que o Brasil é um dos países que mais importam esse tipo de insumo daquela região (DIAS, 2006 e CARDOSO, 2012).

Tabela 15. Concentração específica de 137 Cs em amostra da abóbora moranga (Bq.kg⁻¹) *.

Radionuclídeo	Conc. Específica Polpa (Bq.kg ⁻¹)	Conc. Específica Casca (Bq.kg ⁻¹)
¹³⁷ Cs	$0,\!43 \pm 0,\!14$	$1,13 \pm 0,22$

*Úmido

4.5 Verduras

Segundo IBGE (2011) o consumo de verduras nos estados da região sudeste é da ordem de 28,7 g por dia *per capita*. Para região metropolitana do Rio de Janeiro, os pequenos produtores da Região Serrana produzem mais da metade da oferta de folhosas.

Para este trabalho, foram escolhidas as verduras mais consumidas pela população do estado do Rio de Janeiro (IBGE, 2011).

As amostras foram obtidas no comércio varejista acessível à população. Na Tabela 17 encontram-se os valores de concentração específica para ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²²⁸Th para seis diferentes tipos de verduras. Observando a Tabela 17, nota-se que não houve quantidade mensurável de ²²⁶Ra nas amostras analisadas, enquanto para o ²²⁸Ra apenas a salsa apresentou concentração específica acima da AMD, $(10,57 \pm 2,21)$ Bq.kg⁻¹. Por outro lado, o ²²⁸Th apresentou quantidade mensurável em 67% das medidas, e a salsa com $(3,82 \pm 1,02)$ Bq.kg⁻¹ tem maior concentração específica. O elemento ⁴⁰K apresenta-se mensurável em todas as amostras de verduras e, novamente, a salsa com $(207,65 \pm 18,24)$ Bq.kg⁻¹ teve maior concentração específica.

VENTURINI (1999) aferiu (137 \pm 7) Bq.kg⁻¹ para alface. Valor este, 44% maior que do presente trabalho, considerando valores médios. Os valores de concentração específica para couve e espinafre coincidiram dentro da margem de erro.

Os valores de concentração específica de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra para alface encontrado por LAURIA (2002) é bem maior que os valores encontrados por SANTOS (2002) e PIETRZAK-FLIS (1997-1). Estes dois últimos autores, utilizando processo de separação química e espectrometria alfa, apresentaram valores de concentração específica abaixo da AMD do espectrômetro gama aqui utilizado. Finalmente, os valores de concentração específica medidos no presente trabalho são maiores que os valores sugeridos pela UNSCEAR (2000). Inclusive, tais valores (Tabela 16) estão abaixo da AMD do sistema de detecção gama aqui utilizado.

Tabela 16. Valores de referência da UNSCEAR (2000) para folhosas, em mBq.kg⁻¹

²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th
50	40	15

Verduras	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Alface	95,96 ± 8,51			$2,37 \pm 0,52$	
Brócolis (flor)	$155,79 \pm 10,51$			1,82 ± 0,49	
Couve	$94,94 \pm 6,85$		<1,49		 Drogonto trabalho
Espinafre	$162,51 \pm 9,25$	<2,89			
Repolho	$71,89 \pm 6,06$			$1,58 \pm 0,37$	_
Salsa	207,65 ± 18,24	<8,72	10,57 ± 2,21	3,82 ± 1,02	
Alface	137 ± 7	< 0,50	< 0,75		
Couve	$90,2 \pm 4,2$	< 0,29	$0,\!68 \pm 0,\!08$		VENTURINI, 1999
Espinafre	158 ± 7	< 0,18	< 0,41		_
Alface		$3,260 \pm 0,002$	10,000 ± 0,003		
Couve		$0,900 \pm 0,002$	$3,500 \pm 0,002$		_ LAUKIA, 2002

Tabela 17. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras de verduras $(Bq.kg^{-1}) *$

Tabela 17 (Co	ntinuação)
---------------	------------

Verduras	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Alface		$0,070 \pm 0,004$	$0,089 \pm 0,004$		
Couve		$0,068 \pm 0,006$	$0,397 \pm 0,006$		SANTOS, 2002
Espinafre		$0,030 \pm 0,006$	0,210 ± 0,006		_
Alface		$0,060 \pm 0,006$		$0,007 \pm 0,001$	PIETRZAK-FLIS, 1997-1

4.6 Diversos

Dentre os alimentos consumidos pela população, os matinais, biscoitos e industrializados guardam proporções consideráveis. Portanto, dedicou-se uma seção a esse tipo de alimento. Novamente, a escolha dos alimentos foi baseada no consumo populacional, e dentre as marcas possíveis, foi dada prioridade àquela líder de vendas.

Em um panorama geral, pode-se observar na Tabela 18 a predominância radiométrica do ⁴⁰K. O leite em pó apresentou concentração específica de (398,02 \pm 20,91) Bq.kg⁻¹. Outros resultados mostram que algumas aproximações para estimar a concentração específica de certos radionuclídeos em alimentos devem ser feitas com restrições. Note, a batata chips apresentou uma concentração específica de (391,55 \pm 21,75) Bq.kg⁻¹, quase quatro vezes maior que o valor da concentração específica aferida neste trabalho para batata, (119,34 \pm 7,38) Bq.kg⁻¹. Apesar de apresentarem o cacau como matéria prima, o achocolatado, o biscoito recheado sabor chocolate e o bolo de chocolate sequer coincidem seus valores dentro da margem de erro. Apenas duas amostras apresentaram quantidades mensuráveis de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra, achocolatado em pó e a batata chips, respectivamente. ²²⁸Th não apresentou valores acima da AMD para alguma amostra. A carne teve valores de concentração de atividade aferido apenas para o ⁴⁰K. Os radionuclídeos ^{226, 228}Ra tiveram valores abaixo da AMD e o ²²⁸Th não apresentou área líquida no espectro.

Amostras líquidas também foram analisadas e os resultados são mostrados na Tabela 19. A maior concentração específica de ⁴⁰K foi medida no vinho, $(38,10 \pm 5,02)$ Bq.kg⁻¹. Valor este 4,7 vezes maior que a segunda maior concentração específica, refrigerante a base de noz de cola. Este último, coincidiu valores de concentração específica com outra amostra de refrigerante a base de cola, agora sem açúcar. A concentração específica para o ²²⁶Ra foi aferida apenas na amostra de água e a concentração específica para o ²²⁸Ra foi aferida apenas no vinho.

Foram feitas análises em dez amostras de água. Do total, cinco amostras foram retiradas de poços artesianos localizados nos municípios de Paracambi, Japeri (Centro, Engenheiro Pedreira e Lages) e Petrópolis e as outras cinco amostras restantes foram obtidas no comércio, envasadas como água mineral. Dessas amostras, apenas três apresentaram valores de concentração específica mensuráveis, Centro de Japeri (Vide Tabela 19), Lages $(2,2 \pm 0.9 \text{ Bq.kg}^{-1})$ e a amostra de Petrópolis $(4,7 \pm 1.7 \text{ Bq.kg}^{-1})$,

estas duas últimas para ²²⁸Ra. Portanto, como o presente estudo mostra uma estimativa de dose devido à ingestão de alimentos, foi escolhida a amostra que apresentou o maior número de radionuclídeos aferidos. Assim, acredita-se que os valores estejam superestimados, visto que em sua maioria os habitantes do estado do Rio de Janeiro não consomem água retirada de poços artesianos.

4.7 Estimativa de dose efetiva para adultos

Existem poucos dados na literatura sobre doses efetivas devido ao consumo de alimentos. Para o estado do Rio de Janeiro, foi encontrado apenas um estudo de estimativa de dose devido ao consumo de vegetais (SANTOS, 2002). No entanto, o presente trabalho apresenta uma proposta mais ampla sobre o assunto, com uma variedade maior de produtos alimentícios, além de obter valores de dose devido a um consumo anual alimentar mais atualizado segundo IBGE (2011).

Para obter os valores de dose efetiva, valeu-se dos coeficientes de dose efetiva publicados na ICRP 119 (2012), cuja unidade é dada em Sv.Bq⁻¹. A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN, 2011) em sua Posição Regulatória 3.01/003 adota como base os valores da ICRP para verificação de conformidade com os limites, restrições de dose e níveis de referência para indivíduos ocupacionalmente expostos. Portanto, os valores de dose efetiva comprometida calculados nesse trabalho são os mesmos caso tivesse sido usado fatores de conversão publicados pela autarquia federal vinculada ao Ministério da Ciência, Tecnologia, Inovações e Comunicações (MCTIC).

Foi necessário conhecer o consumo médio de alimentos, com vistas a obter a quantidade total de becquerel ingerida em um ano. Para esta etapa, foram utilizados os dados publicados pelo IBGE (2011) sobre *"Análise do Consumo Alimentar Pessoal no Brasil"* e os dados de concentração específica apresentados nas seções anteriores do presente trabalho. Para calcular a dose efetiva, foram utilizados apenas os valores médios das concentrações específicas aqui medidas.

Diversos	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Achocolatado em pó	217,15 ± 13,31	6,23 ± 1,97			
Batata chips (Ruffles)	391,55 ± 21,75		$4,72 \pm 1,15$	< 1,82	
Biscoito Cheetles	99,10 ± 10,37	< 7,22		< 1,72	
Biscoito Maizena	$47,25 \pm 8,10$			< 1,64	
Biscoito recheio choc.	110,69 ± 9,84	< 5,78			
Bolo chocolate	$73,52 \pm 8,48$		< 5,03		 Presente trabalho
Cereal matinal	$50,\!60 \pm 8,\!42$				
Leite em pó	$398,02 \pm 20,91$				
Macarrão instantâneo	72,53 ± 9,24				
Óleo soja			< 2,27	< 1,22	
Pão francês	50,38 ± 10,91		<4,05		
Pão Integral	59,23 ± 17,80		< 8,38		

Tabela 18. Concentração específica de radionuclídeos naturais em alimentos diversos (Bq.kg⁻¹) *

Líquidos	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Água subsolo	$2,90 \pm 1,67$	$4,20 \pm 0,90$			
Refrigerante	8,08 ± 3,46	< 3,37	< 1,65		
Refrigerante s/ açúcar	7,67 ± 3,64				Presente trabalho
Cerveja	6,56 ± 2,62				
Vinho	38,10 ± 5,02		$1,81 \pm 0,54$		

Tabela 19. Concentração específica de radionuclídeos naturais em amostras líquidas (Bq.kg⁻¹) *

Tabela 20. Concentração específica de radionuclídeos naturais na amostra de carne (Bq.kg $^{-1}$) *

Perecível	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Referência
Carne	104.7 ± 5.3	< 5.93	< 3.0		Presente trabalho

Os valores de referência da UNSCEAR (2000) para dose efetiva anual devido à ingestão dos radionuclídeos ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ²²⁸Th são apresentados na Tabela 21. Note que não há valores de referência para ⁴⁰K, pois este, independentemente do consumo pessoal, está em equilíbrio homeostático com o organismo, tendo o valor de dose efetiva total sugerido em 165 µSv.ano⁻¹ (UNSCEAR, 2000).

Radionuclídeo	Dose efetiva (µSv.ano ⁻¹)
²²⁶ Ra	6,3
²²⁸ Ra	11
²²⁸ Th	0,22

Tabela 21. Valores de referência para dose efetiva comprometida (UNSCEAR, 2000)

A Tabela 22 mostra o detalhamento dos valores de dose efetiva para 40 K, 226 Ra, 228 Ra e 228 Th, segundo o consumo de cereais, legumes, verduras, frutas, diversos e líquidos. A ausência do total geral na última linha da Tabela 22 deve-se ao equilíbrio homeostático do radionuclídeo 40 K, que entrega ao indivíduo uma dose efetiva de 165 μ Sv.ano⁻¹. Portanto, o somatório vertical da Tabela 22 para o radionuclídeo 40 K será maior que o sugerido pela UNSCEAR (2000) para dose efetiva anual para este radioelemento. Por outro lado, o somatório horizontal torna-se útil porque se pode analisar a contribuição de cada grupo de alimentos para dose efetiva.

Os coeficientes de dose efetiva segundo a ICRP 119 (2012) são aqueles mostrados na Tabela 23. Note que os maiores coeficientes são aqueles correspondentes ao ²²⁶Ra e ao ²²⁸Ra.

	⁴⁰ K	²²⁶ Ra	²²⁸ Ra	²²⁸ Th	Total
Arroz	7,69				7,69
Farinha de mandioca	0,17		0,43	0,02	0,62
Feijão	242	120	194		556
Abóbora	0,76	2,00			2,76
Batata	6,27	6,26			12,5
Beterraba	0,60	0,20	2,41	0,06	3,27
Cenoura	0,35		9,88	0,07	10,3
Chuchu	0,17				0,17
Mandioca	1,54				1,54
Pepino	0,04		0,06		0,10
Tomate	1,06				1,06
Alface	0,82			0,24	1,06
Couve	1,10				1,10
Repolho	0,18			0,05	0,23

Tabela 22. Valores de dose efetiva anual (μ Sv.ano⁻¹)

	Tabe	ela 22. (continu	uação)		
Abacaxi	0,12				0,12
Banana prata	3,87			0,79	4,66
Laranja pera	2,64				2,64
Maça fuji	1,10			0,45	1,55
Mamão havaí	0,97				0,97
Melancia	0,28				0,28
Biscoito doce (maisena)	0,42				0,42
Biscoito recheado	1,05				1,05
Bolo	2,43				2,43
Cereal matinal	0,13				0,13
Macarrão instantâneo	1,08				1,08
Pão francês	5,94				5,94
Salgadinho industrializado	0,62		0,83		1,45
Água subsolo	13,1	858			871
Refrigerante	2,04				2,04
Cerveja	0,53				0,53
Vinho	0,14		0,73		0,87
Carne	15,0				15,0
Total		986	208	1,68	

Dadianualidaa	Coeficientes de		
Kadionuciideo	dose (nSv.Bq ⁻¹)		
⁴⁰ K	6,2		
²²⁶ Ra	280		
²²⁸ Ra	690		
²²⁸ Th	72		

Tabela 23. Coeficientes de dose segundo ICRP 119 (2012)

Portanto pode-se esperar que quanto maior for a concentração específica de 226 Ra e 228 Ra nos alimentos, associado ao consumo médio anual, maior será a dose efetiva. A Figura 26 mostra o perfil de dose efetiva comprometida para as diversas categorias de alimentos estudadas no presente trabalho. Pode-se perceber que as bebidas apresentaram maior contribuição para dose efetiva. Essa maior contribuição é devida à água aferida neste trabalho, por possuir uma concentração específica de (4,20 ± 0,90) Bq.kg⁻¹ para o 226 Ra, além de ser o elemento de subsistência de maior consumo, 730 l.ano⁻¹ (\approx 730 kg.ano⁻¹)



Figura 26. Dose efetiva comprometida por categoria de alimentos (μ Sv.ano⁻¹).

Nos cereais, a segunda categoria de alimentos que mais contribui para dose efetiva comprometida, entende-se que o feijão foi o protagonista, com um consumo médio de 218 g.dia⁻¹ e uma concentração específica de (489,36 \pm 23,70) Bq.kg⁻¹ para o ⁴⁰K, (5,40 \pm 1,39) Bq.kg⁻¹ para ²²⁶Ra e (3,54 \pm 1,07) Bq.kg⁻¹ para ²²⁸Ra. Haja vista que, o arroz, segundo maior contribuinte, tem a dose efetiva comprometida duas ordens de grandeza menor.

As maiores concentrações específicas de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra estão presentes nos legumes e tubérculos, no entanto a baixa taxa de consumo desses alimentos faz com que essa categoria ocupasse a terceira maior contribuição para a dose efetiva.

Frutas, diversos, verduras e carne não apresentaram concentrações específicas mensuráveis para ²²⁶Ra e ²²⁸Ra segundo a metodologia proposta neste trabalho. O que difere a contribuição total de cada uma das categorias é a taxa de consumo anual, menor para verduras.



Figura 27. Dose efetiva comprometida por radionuclídeo (µSv.ano⁻¹)

A Figura 27 mostra o perfil de dose efetiva por radionuclídeos. Não há necessidade de calcular a dose efetiva comprometida total para 40 K, pois este radionuclídeo está em equilíbrio homeostático com o organismo, isto é, a dose devido a este radioelemento é sempre a mesma, e independe do consumo anual. Mas, para efeitos de comparação, o resultado encontrado no presente trabalho para a dose efetiva comprometida total de 40 K foi de 314 µSv.ano⁻¹, valor este quase duas vezes maior que o

valor máximo sugerido pela UNSCEAR (2000) de 165 µSv.ano⁻¹.

A maior dose efetiva encontrada no presente trabalho foi devido ao 226 Ra. Essa contribuição deu-se devido à concentração específica deste radionuclídeo nos dois elementos de subsistência com maior taxa de consumo, (5,40 ± 1,39) Bq.kg⁻¹ no feijão preto e (4,20 ± 0,90) Bq.kg⁻¹ para água.

O ²²⁸Ra tem sua maior contribuição na dose efetiva comprometida, devido à concentração específica deste radionuclídeo no feijão, $(3,54 \pm 1,07)$ Bq.kg⁻¹, que tem alta taxa de consumo anual, $(9,58 \pm 0,80)$ Bq.kg⁻¹ para beterraba, $(30,18 \pm 1,99)$ Bq.kg⁻¹ para cenoura e $(0,75 \pm 0,19)$ Bq.kg⁻¹ para o pepino. Salgadinho industrializado e o vinho somaram, mesmo que discretamente, na dose efetiva total para ²²⁸Ra.

O ²²⁸Th teve sua maior contribuição nas frutas, verduras e legumes e tubérculos.

A Figura 28 detalha a contribuição para dose efetiva de cada radionuclídeo para todas as categorias de alimentos estudadas neste trabalho. Pode-se perceber que a contribuição para dose efetiva dos cereais é muito próxima para os radionuclídeos ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra. Igualmente, a contribuição para dose efetiva devida ao consumo de legumes e tubérculos também é próxima para os radionuclídeos ⁴⁰K, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra. Para essas duas categorias de alimentos, a contribuição para dose efetiva do radionuclídeo ²²⁸Th é discreta, quando comparado com a contribuição dos outros radionuclídeos. Para os líquidos, o destaque do radionuclídeo ²²⁶Ra deve-se às causas discutidas anteriormente, alto consumo anual de água somado à concentração específica do radionuclídeo ²²⁶Ra aferida na espectrometria gama. A maior contribuição do elemento ²²⁸Th para dose efetiva está na categoria das frutas.

A Figura 29 mostra a contribuição percentual de cada um dos radionuclídeos estudados para as diversas categorias de alimentos analisados. Percebe-se que as categorias cereais e legumes/tubérculos são as únicas categorias com contribuição mensurável para todos radionuclídeos analisados. Os cereais com extremos de 93% de contribuição para ²²⁸Ra e mínimo de 1,4% para ²²⁸Th. Já a categoria legumes/tubérculos tiveram máximo de 7,9% para ²²⁸Th e mínimo de 0,9% para ²²⁶Ra.



Figura 28. Dose efetiva por radionuclídeo e categoria de alimentos (μ Sv.ano⁻¹)


Figura 29. Contribuição percentual na dose efetiva comprometida em diferentes categorias de alimentos devido aos radionuclídeos ⁴⁰K, ^{226,228}Ra e ²²⁸Th.

CAPÍTULO 5 Conclusões

A validação do sistema de espectrometria gama (HPGe) foi feita a partir da comparação dos dados experimentais de eficiência e dos valores simulados de eficiência pelo programa LabSOCS. As fontes utilizadas foram de geometria puntiforme, cilíndrica e no formato marinelli, sendo certificadas pelo Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes da Divisão de Metrologia (DIMET) e pela empresa AMETEK/Ortec. As diferenças percentuais entre os valores de eficiência obtidos experimentalmente e utilizando o LabSOCS oscilaram entre o valor mínimo de 0,9 % e o valor máximo de 7,1 %, com uma média de 3,2 % de desvio, indicando uma boa confiabilidade metodológica do HPGe.

As concentrações específicas encontradas no presente trabalho estão na mesma ordem de grandeza que as concentrações específicas encontradas por outros autores quando estes utilizaram a mesma metodologia aqui proposta. Os valores de dose efetiva foram calculados com base nas concentrações específicas, nos dados do consumo médio anual (IBGE, 2011) e nos coeficientes de dose da publicação 119 da ICRP (2012). O valor calculado foi de 1,36 mSv.ano⁻¹, quase 5 vezes acima do valor de referência sugerido pela UNSCEAR (2008) de 0,29 mSv.ano⁻¹ para dose de radionuclídeos naturais devido a ingestão. O principal contribuinte para este valor foi a concentração específica de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra no feijão e na água aferida neste trabalho, visto que estes dois radioelementos tem os maiores fatores de conversão para dose efetiva para os radionuclídeos, e os dois alimentos as maiores médias de consumo anual dentre todos os alimentos estudados.

Para fins comparativos, a ausência de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra nesses alimentos, obter-se-ia uma dose efetiva comprometida próxima a 0,2 mSv.ano⁻¹.

Dentre as categorias de alimentos estudadas, pode-se perceber que os líquidos ingeridos são os que mais contribuem para dose efetiva anual, seguido dos cereais, legumes/tubérculos, diversos, frutas e, por último, verduras. O principal fator para essa classificação está no quesito consumo, visto que os alimentos com maior concentração específica foram os legumes. No entanto, seu baixo consumo anual faz com que esta

categoria seja o terceiro maior contribuinte. Dentre os radionuclídeos, o ²²⁶Ra apresentou-se como o maior contribuinte para dose efetiva anual, seguido do ²²⁸Ra, ⁴⁰K (equilíbrio homeostático) e ²²⁸Th.

Uma novidade apresentada no presente trabalho foi a inserção do valor de concentração específica e cálculo de dose efetiva devida à ingestão de produtos industrializados, aqui denominado diversos e algumas bebidas. Haja vista sua contribuição significativa para dose efetiva anual, visto que essa categoria está na lista dos alimentos mais consumidos. Foi possível perceber que algumas aproximações utilizadas em radioproteção devem ser feitas com algumas restrições. A batata chips analisada neste trabalho tem concentração específica para ⁴⁰K quase quatro vezes maior que a batata inglesa, sua matéria prima. Alimentos cuja matéria prima é o chocolate, sequer coincidiram valores dentro da margem de erro.

O ¹³⁷Cs foi o único radionuclídeo artificial com valores de concentração específica mensurável neste trabalho. $(0,43\pm0,14)$ Bq.kg⁻¹ para polpa da abóbora moranga, e (1,13±0,22) Bq.kg⁻¹ para casca do legume. Acredita-se que a contaminação tenha ocorrido devido à insumos contaminados, principalmente aqueles importados da Rússia, do qual o Brasil é um dos maiores consumidores.

Este trabalho contribui relevantemente para literatura científica, pois dados de concentração específica dos mais variados tipos de alimentos e valores de dose efetiva a partir do consumo médio atualizado estão disponíveis.

Trabalhos futuros

Entendendo que o grande contribuinte para dose efetiva calculado no presente trabalho se deve à concentração específica de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra na água utilizada na espectrometria, e sendo esta amostra, especificamente, retirada de poço artesiano, podese estudar quão sujeito à dose efetiva estão pessoas que moram em regiões que não recebem água tratada, como algumas regiões da Baixada Fluminense, por exemplo.

Ademais, em uma próxima etapa, pode-se estender o cálculo de dose efetiva para diversas faixas etárias abrangidas pelos coeficientes de conversão segundo publicação 119 da ICRP (2012).

Pretende-se estabelecer métodos para calcular a concentração de atividade em

97

diversos vegetais cultivados no estado do Rio de Janeiro e a partir do conhecimento do complexo processo de distribuição alimentícia no estado, gerar um mapa para Valores de Referência para dose efetiva comprometida.

Pretende-se analisar em termos comparativos a dose comprometida devido a ingestão de alimentos cultivados em regiões próximas às indústrias que trabalham com Materiais Radioativos de Origem Natural (Indústrias NORM e TENORM), tais como Buena (RJ), Caetité (BA), Caldas (MG) e Santa Quitéria (CE).

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- AAECRE. AUSTRALIAN ATOMIC ENERGY COMMISSION RESEARCH ESTABLISHMENT. A Guide and Instruction for Determining g-Ray Emission Rates with Germanium Detector Systems. Debertin. Braunschweig, 1980.
- AGBALAGBA, E. O; AVWIRI, G. O; ONONUGBO, C. P; Activity concentration and radiological impact assessment of 226Ra, 228Ra and 40K in drinking waters from (OML) 30, 58, and 61 oil fields and host communities in Niger Delta region of Nigeria. J Environ Radioactiv, 2013.
- AL-MASRI, M. S; MUKALLATI, H; AL-HAMWI, A; KHALILI, H; HASSAN, M; ASSAF, H; AMIN, Y; NASHAWATI, A; *Natural radionuclides in Syrian diet* and their daily intake. J Radioanal Nucl Chem, 2004.
- ALMEIDA, R. M. R., LAURIA, D. C., FERREIRA, A. C., SRACEK, O; Groundwater radon, radium and uranium concentrations in Região dos Lagos, Rio de Janeiro State, Brazil. J Environ Radioact, V 73, Issue 3, p 323-334, 2004.
- AMARAL, R. S; VASCONCELOS, W. E; BORGES, E; SILVEIRA, S. V; MAZZILLI,
 B. P; Intake of uranium and radium-226 due to food crops consumption in the phosphate region of Pernambuco-Brazil. J Environ Radioact, 2005.
- ANDREUCCI, R; Proteção Radiológica Aspectos Industriais. Abende, 2003.
- AQUINO, F. S; Urânio natural na dieta e no leite do bovino no agreste semiárido do estado de Pernambuco. Dissertação M.Sc. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, UFPE, 2006.
- AROGUNJO, A. M; HÖLLRIEGL, V; GIUSSANI, A; LEOPOLD, K; GERSTMANN, U; VERONESE, I; OEH, U; Uranium and thorium in soils, mineral sands, water and food samples in a tin mining area in Nigeria with elevated activity. J ENVIRON RADIOACTIV, 2009.
- ASEFI, M; FATHIVAND, A. A; AMIDI, J; Estimation of annual effective dose from ²²⁶Ra and ²²⁸Ra due to consumption of foodstuffs by inhabitants of Ramsar city, Iran. Iran. J. Radiat. Res, 2005.

- AVADHANI, D. N; MAHESH, H. M; KARUNAKARA, N; NARAYANA, Y; SOMASHEKARAPPA, H. M; SIDDAPPA, K; Dietary intake of ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb in the environment of Goa of South-West coast of India. Health Physics, 2001.
- AVWIRI, G. O; OSAROLUBE, E; ALAO, A. A; assessment of natural radionuclide contente in some commonly consumed vegetables and fruits in Oil Mining Lease (OML) 58 and 61, oil and gas producing areas in the Niger Delta Region of Nigeria using gamma-ray. IJSR-International Journal of Scientific Research, 2013.
- BADRAN, H. M; SHARSHAR, T; ELNIMER, T; Levels of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in edible parts of some vegetables consumed in Egypt. J Environ Radioact, 2003.
- BAN-NAI, T; MURAMATSU, Y; YOSHIDA, S; Concentration of ¹³⁷Cs and ⁴⁰K in mushrooms consumed in Japan and radiation dose as a result of their dietary intake. J Radiat Res, 2004.
- BIKIT, I; SLIVKA, J; VESKOVIC, M; KRMAR, M; FORKAPIC, S; MRDA, D; PODUNAVAC-KUZMANOVIC, S; ILES, F; *Determination of food radioactivity by means of low-level gamma spectroscopy*. J Food Phys, 2006.
- BOSHKOVA, T; MINEV, L; Corrections for self-attenuation in gamma-ray spectrometry of bulk samples. Appl Radiat Isotopes, 2001.
- BRADY, C.N; *Natureza e propriedade dos solos*. 7ª edição. Rio de Janeiro, Freitas Bastos, 1989.
- CARDOSO, L. X; Análise de radionuclídeos naturais e artificiais do solo e de produtos alimentícios do estado de Sergipe, principalmente da região do platô de Neópolis (SE). Tese de Ph. D. – Programa de pós-graduação em Física, Universidade Federal de Sergipe, 2012.
- CEVIK, U; CELIK, N; CELIK, A; DAMLA, N; COSKUNCELEBI, K; Radioactivity and heavy metal levels in hazelnut growing in the Eastern Black Sea Region of Turkey. Food Chem Toxicol, 2009.
- CNEN; Coeficientes de dose para indivíduos ocupacionalmente expostos, Posição Regulatória 3.01/003, 2011.

- CÓRDOVA, K.R.V; GAMA, T.M.M.T.B; WINTER, C.M.G; NETO, G.K; FREITAS, R.J.S; Características físico-químicas da casca do maracujá-amarelo (Passiflora edulis Flavicarpa Degener) obtidas por secagem. Boletim CEPPA, Curitiba, 2005.
- CROUTHAMEL, C.E; ADAMS, F; DAMS, R; *Applied gamma-ray spectrometry*, Pergamon Press 2^a ed, 1970.
- CURRIE, L. Limits for qualitative detection and quantification determination. Anal. Chem. 1968.
- DESIDERI, D; ROSELLI, C; FORINI, N; RONGONI, AQ; MELI, M. A; FEDUZI, L; Alpha and gamma spectrometry for the radiological characterization of animal feed. Microchem J, 2014.
- DESIMONI, J; SILVES, F; ERRICO, L; MASTRANTONIO, G; TAYLOR, M. A; *Activity levels of gamma-emitters cow milk.* Journal of Food Composition and Analysis, 2009.
- DIAS, V. P; FERNANDES, E; *Fertilizantes: uma visão global sintética*. BNDES Setorial, Rio de Janeiro, 2006.
- EL SAMAD, O; ALAYAN, R; BAYDOUN, R; ZAIDAN, W; Radiation baseline levels in Lebanon: environmental survey and public dose assessment. Lebanese Science Journal, 2012.
- ELE ABIAMA, P; BEN-BOLIE, G. H; AMECHMACHI, N; NAJIBB, F; EL KHOUKHI, T; OWONO ATEBA, P; Annual intakes of ²²⁶Ra, ²²⁸Ra and ⁴⁰K in staple foodstuffs from a high background radiation area in the southwest region of Cameroon. Journal of Environmental Radioactivity, 2012.
- FERNANDO, K; Wong, R; Taylor, B. Validation of gamma spectroscopy systems for free release measurements. Annual meeting of the international network of laboratories for nuclear waste characterization (LABONET). Viena, 2013.
- GILMORE, G. R; *Practical gamma ray spectrometry*. John Wiley & Sons Ltd, 2nd Edition, UK, 2008.

- GONDIM, A. M; MOURA, V. M. F; DANTAS, S.A; MEDEIROS, R. L. S; SANTOS,
 K. M. *Composição Centesimal e de minerais em cascas de frutas*. Ciência Tecnologia de Alimentos, Campinas, 2005.
- HALL, E. J; AMATO, J. G; *Radiobiology for Radiologist*. Seventh Edition, LWW, 2012.
- HEILBRON FILHO, P. F. L; XAVIER, A. M; PONTEDEIRO, E. M; FERREIRA, R. S; Segurança nuclear e proteção do meio ambiente. E-papers Serviços Editoriais Ltda, 2004.
- HERNÁNDEZ, F; HERNÁNDEZ-ARMAS, J; CATALÁN, A; FERNÁNDEZ-ALDECOA, J. C; LANDERAS, M. I; Activity concentrations and mean effective dose of foodstuffs on the island of Tenerife, Spain. Radiat Prot Dosimetry, 2004.
- HOSSEINI, T; FATHIVAND, A. A; BARATI, H; KARIMI, M; Assessment of radionuclides in imported foodstuffs in Iran. Iran. J. Radiat. Res., 2006.
- IAEA; Measurement of Radionuclides in Food and the Environment. International Atomic Energy Agency, Vienna, 1989.
- IBGE; *Pesquisa de Orçamentos Familiares 2008-2009*. Diretoria de Pesquisas, Coordenação de Trabalho e Rendimento, 2011.
- ICRP, 1979. Limits for Intakes of Radionuclides by Workers. ICRP Publication 30 (Part 1). Ann. ICRP 2 (3-4).
- ICRP, 1991. 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60. Ann. ICRP 21 (1-3).
- ICRP, 1991. 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 60. Ann. ICRP 21 (1-3).
- ICRP, 1994. Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers. ICRP Publication 68. Ann. ICRP 24 (4).

- ICRP, 1995. Age-dependent Doses to the Members of the Public from Intake of Radionuclides - Part 5 Compilation of Ingestion and Inhalation Coefficients. ICRP Publication 72. Ann. ICRP 26 (1).
- ICRP, 1996. Conversion Coefficients for use in Radiological Protection against External Radiation. ICRP Publication 74. Ann. ICRP 26 (3-4).
- ICRP, 1997. General Principles for the Radiation Protection of Workers. ICRP Publication 75. Ann. ICRP 27 (1).
- ICRP, 2007. The 2007 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. ICRP Publication 103. Ann. ICRP 37 (2-4). ICRP, 1994. Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. ICRP Publication 66. Ann. ICRP 24 (1-3).
- ICRP, 2012. Compendium of Dose Coefficients based on ICRP Publication 60. ICRP Publication 119. Ann. ICRP 41(Suppl.).
- IFGW. Portal do Instituto de Física Gleb Wataghin. <u>http://www.ifi.unicamp.br/~fauth/3RadioatividadeeParticulas/1AlfaBetaGama/</u> <u>Alfabetaegama.html</u>. Acessado 31 de agosto, 2016.
- IF-UFRGS. O que existe na Natureza. Instituto de Física da Universidade federal do Rio Grande do Sul. <u>https://www.if.ufrgs.br/cref/radio/capitulo4.htm</u>. Acessado em 05 de setembro, 2016.
- JIBIRI, N. N; FARAI, I. P; ALAUSA, S. K; Estimation of annual effective dose due to natural radioactive elements in ingestion of foodstuffs in tin mining area of Jos-Plateau, Nigeria. J Environ Radioact, 2007.
- KAMINSKI, S; JAKOBI, A; WILHELM, C. H. R; Uncertainty of gamma-ray spectrometry measurement of environmental samples due to uncertainties in matrix composition, density and sample geometry. Appl Radiat Isotopes, 306-313, 2014.
- KAPLAN, I. Física Nuclear. Guanabara Dois, 2º ed, 1978.

- KNOLL, G. F; *Radiation Detection and Measurement*. John Wley and sons, 4^a ed, USA, 2010.
- LAURIA, D. C; HACON, S; POLÔNIO, M. L; Dose de ingestão devido ao consumo de alimentos: diferenças entre áreas de radioatividade natural elevada e normal.
 International Nuclear Atlantic Conference, Rio de Janeiro. 2002.
- LAURIA, D. C; RIBEIRO, F. C. A; CONTI, C. C; LOUREIRO, F. A; Radium and uranium levels in vegetables grown using different farming management systems. J Environ Radioact, 2009.
- LARIVIÈRE V, HAUSTEIN S and MONGEON P. The oligopoly of academic publishers in the digital era. PLoS ONE. Public Library of Science, Vol. 10, 2015.
- LOPES, J. M.; MEDEIROS, M. P. C.; Garcêz, R. D.; FILGUEIRAS, R. A.; THALHOFER, J. L.; SILVA JUNIOR, W. F. R.; Silva, A. X. Assessment of LabSOCS as a tool for the calculation of self-attenuation coefficients in gamma spectrometry. XVII International symposium on solid state dosimetry, Santo Domingo.2017.
- MEDINA, N. H; BRANCO, M. L. T; SILVEIRA, M. A. G; SANTOS, R. B. B; Dynamic distribution of potassium in sugarcane. Journal of Environmental Radioactivity, 2013.
- MELI, M. A; CANTALUPPI, C; DESIDERI, D; BENEDETTI, C; FEDUZI, L; CECCOTTO, F; FASSON, A. *Radioactivity measurements and dosimetric evaluation in meat of wild and bred animals in central Italy.* Food Control, 2013.
- MELQUIADES, F. L; APPOLONI, C. R; Radioatividade natural em amostras alimentares. Cad. Brás. Ens. Fís. 2004.
- MIN-SEOK CHOI; XIU-JING LIN; SUN AH LEE; WAN KIM; HEE-DONG KANG; SIH-HONG DOH; DO-SUNG KIM; DONG-MYUNG LEE; *Daily intakes of naturally occurring radioisotopes in typical Korean foods*. J Environ Radioact, 2008.

- MISDAQ, M. A; BOURZIK, W; Determination of committed effective doses from annual intakes of ²³⁸U and ²³²Th from the ingestion of cereals, fruits and vegetables by using CR-39 and LR-115 II SSNTD. J Radioanal Nucl Chem, 2002.
- MONDINI, L; MORAES, S. A; FREITAS, I. C. M; GIMENO, S. G. A; Consumo de frutas e hortaliças por adultos em Ribeirão Preto, SP. Rev Saúde Pública, 2010.
- NEPA Núcleo de Estudo e Pesquisa em Alimentação. Tabela Brasileira de Composição de Alimentos. 4ª Ed. Revisada e Ampliada, UNICAMP, 2011.
- NORM Naturally Occurring Radioactive Materials. World Nuclear Association.

 Disponível
 em: http://www.world-nuclear.org/info/Safety-and-Security/Radiation-and-Health/Naturally-Occurring-Radioactive-Materials-

 NORM/
 Acessado em: 30/11/2014.
- NOUAILHETAS, Y; *Radiações Ionizantes e a Vida*. Disponível em <u>http://www.cnen.gov.br/ensino/apostilas/rad_ion.pdf</u>. Acessado em 15 de maio de 2012.
- OTA, T; SANADA, T; KASHIWARA, Y; MORIMOTO, T; SATO, K; *Evaluation for committed effective dose due to dietary foods by the intake for japanese adults.* Jpn. J. Health Phys, 2009.
- PIETRZAK-FLIS, Z; SUPLINSKA, M. M; ROSIAK, L; *The dietary intake of*²³⁸U, ²³⁴U, ²³⁰Th, ²³²Th, ²²⁸Th and ²²⁶Ra from food and drinking water by inhabitants of the Walbrzych region. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 1997-1.
- PIETRZAK-FLIS, Z; CHRZANOWSKI, E; DEMBINSKA, S; *Intake of* ²²⁶*Ra*, ²¹⁰*Pb and* ²¹⁰*Po with food in Poland*. The Science of the Total Environment, 1997-2.
- PIETRZAK-FLIS, Z; ROSIAK, L; SUPLINSKA, M. M; CHRZANOWSKI, E; DEMBINSKA, S; Daily intakes of ²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th and ²²⁶Ra in the adult population of central Poland. Sci Total Environ, 2001

- SANTOS, E. E; Radionuclídeos naturais e metais pesados em vegetais da dieta da população da cidade do rio de janeiro. Tese, D.Sc. UERJ, 2002a.
- SANTOS, E. E; LAURIA, D. C; AMARAL, E. C. S; ROCHEDO, E. R; Daily ingestion of ²³²Th, ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²²⁸Ra and ²¹⁰Pb in vegetables by inhabitants of Rio de Janeiro City. J Environ Radioact, 2002b.
- SANTOS, E; LAURIA, D; RIBEIRO, E; NICOLI, I; CORRÊA, R; Levels of ⁴⁰K in edible parts of some vegetables consumed in Brazil Middle West Region. 12th International Congress of the International Radiation Protection Association, IRPA-12, Buenos Aires, 2008.
- SCHEIBEL, V; Determinação das Doses Efetivas por Ingestão de Farinhas de Cereais Através da Espectrometria de Raios Gama. Tese D.Sc. UEL, Londrina, Paraná, Brasil, 2006.
- SCHEIBEL, V; APPOLONI, C. R; *Radioactive trace measurements of some exported foods from the south of Brazil.* J Food Comp Anal, 2007.
- SHANTHI G; KUMARAN, J. T. T; G NANA RAJ, G. A; MANIYAN, C. G; *Natural radionuclides in the South Indian foods and their annual dose*. Nucl Instrum Meth A, 2010.
- SILVA, M. C; Estudo das Interações dos Produtos da Radiólise da Água com a Miotoxina do Veneno de Crotalus Durissus Terrificus. IPEN, 2008.
- SKWARZEC, B; STRUMINSKA, D. I; BORYLO, A; FALANDYSZ, J; Intake of ²¹⁰Po, ²³⁴U and ²³⁸U radionuclides with beer in Poland. J Radioanal Nucl Chem, 2004.
- TAUHATA, L., SALATI, I., PRINZIO, R.D., PRINZIO, A. R.D; Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos. Instituto de Radioproteção e Dosimetria – IRD/CENEN, 10ª revisão, 2014.
- TUFAIL, M; SABIHA-JAVIED; AKHTAR, N; AKHTER, J; Assessment of annual effective dose from natural radioactivity intake through wheat grain produced in Faisalabad, Pakistan. J Radioanal Nucl Chem, 2010.

- UMISEDO, N. K., Dose de radiação ionizante decorrente do uso de fertilizantes agrícolas. Tese de doutorado – Programa de pós-graduação em saúde pública da faculdade de Saúde Pública. Universidade de São Paulo, São Paulo, SP, Brasil, 2007.
- UNSCEAR United Nations Scientific Commitee on the Effects Atomic Radiation. Sources and effects of ionizing radiation. Vienna, 2000.
- UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation. Report to the General Assembly Annex B: Exposures of the public and workers from various sources of radiation, New York, United Nations, 2008.
- VASCONCELOS, D. C; Estudo da radioatividade natural em areias de praias do extremo sul da Bahia utilizando métodos de análises nucleares. Tese de Ph. D. Programa de Pós-graduação em Ciências e Técnicas Nucleares/UFMG, 2010.
- VENTURINI, L; SORDI, G. A. A; *Radioactivity in and committed effective dose from some Brazilian foodstuffs*. Health Physics, 1999.
- WHO; World Health Organization. Guidelines for Drinking Water Policy. In: Incorporating the 1st and 2nd Agenda, third ed., vol. 1, Geneva, Switzerland, 2008.