



CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA A UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

DETERMINAÇÃO DE ^{210}Pb E ^{210}Po EM ÁGUAS MINERAIS RADIOATIVAS

ARTIDORO NIERI NETO

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

Orientadora:
Dra. Bárbara Paci Mazzilli

São Paulo
1996

mark



ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

DETERMINAÇÃO DE ^{210}Pb E ^{210}Po EM ÁGUAS MINERAIS RADIOATIVAS

ARTIDORO NIERI NETO

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

Orientadora:
Dr^a Barbara Paci Mazzilli

São Paulo
1996



AGRADECIMENTOS

Ao Dr. Cláudio Rodrigues, Superintendente do Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares.

À Dra. Linda Caldas, chefe do Serviço de Proteção Radiológica.

À Dra. Barbara Paci Mazzilli, pela oportunidade oferecida para o desenvolvimento e realização deste trabalho.

À Dra. Marlene Sotto Mayor Szeles pelo incentivo, pelas discussões e sugestões.

Aos Professores e Doutores do Curso de Pós-Graduação.

À Prefeitura da Cidade de Águas da Prata, na pessoa da funcionária Sra. Iracema da Silva Horle pelo auxílio fornecido.

Aos colegas e amigos da Divisão de Monitoração Ambiental.

Ao Conselho Nacional de Pesquisa e Desenvolvimento Tecnológico-CNPq, pela concessão de uma bolsa de mestrado.

À Joselene de Oliveira e José Marinho da Silva pela colaboração nos trabalhos de coleta.

DETERMINAÇÃO DE ^{210}Pb E ^{210}Po EM ÁGUAS MINERAIS RADIOATIVAS

Artidoro Nieri Neto

RESUMO

O presente trabalho tem por objetivo determinar as concentrações dos radionuclídeos ^{210}Pb e ^{210}Po em amostras de água provenientes de fontes minerais consumidas pela população e visitantes da Estância de Águas da Prata. Foi avaliado também o risco decorrente da ingestão desses radionuclídeos, por meio da determinação da dose equivalente efetiva e da dose equivalente nos órgãos considerados mais críticos.

As águas foram coletadas em todas as fontes públicas disponíveis no Município de Águas da Prata, durante um período de um ano, de forma a se poder estudar uma eventual variação nas concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po com as estações do ano.

As amostras foram concentradas por evaporação e precipitadas pela adição de sulfeto de sódio. Foram utilizados carregador de chumbo estável e traçador de ^{208}Po para a determinação do rendimento químico da metodologia aplicada. O radionuclídeo ^{210}Pb foi determinado pela contagem beta total do precipitado de PbCrO_4 em um detetor proporcional de fluxo gasoso de baixa radiação de fundo. O radionuclídeo ^{210}Po foi depositado espontaneamente sobre um disco de cobre e a medida de sua atividade foi realizada por espectrometria alfa utilizando-se um detetor de barreira de superfície.

Foram observadas concentrações variando de 6 mBq.L^{-1} a 1378 mBq.L^{-1} para o ^{210}Pb e de 3 mBq.L^{-1} a 494 mBq.L^{-1} para o ^{210}Po . As doses foram estimadas para se avaliar a contribuição relativa desses radionuclídeos à exposição à radiação natural decorrente da ingestão dessas águas. Foram encontrados valores de até $2,8 \cdot 10^{-1} \text{ mSv.a}^{-1}$ e de até $2,0 \cdot 10^{-1} \text{ mSv.a}^{-1}$ para a dose equivalente efetiva devida à ingestão de ^{210}Pb e de ^{210}Po presentes nas águas analisadas. A dose equivalente para os órgãos mais críticos, considerando-se a ingestão de ^{210}Pb e de ^{210}Po , alcançou valores de $9,1 \text{ mSv.a}^{-1}$ e de $2,2 \text{ mSv.a}^{-1}$, respectivamente.

DETERMINATION OF ^{210}Pb AND ^{210}Po IN MINERAL SPRING WATERS

Artidoro Nieri Neto

ABSTRACT

The main purpose of the present study is to determine the activity concentration of ^{210}Pb and ^{210}Po in mineral spring waters available in the Águas da Prata region. It was also evaluated the risk due to the ingestion of such waters, by means of the effective dose equivalent and the dose equivalent for the critical organs.

The water samples were collected in all the water springs consumed by the local population and tourists of Águas da Prata, over a period of one year, in order to detect a possible seasonal variation in the radionuclides concentration.

The samples were concentrated by evaporation and precipitated by addition of sodium sulphide. Stable lead and ^{208}Po tracers were used in order to determine the chemical yield of the methodology adopted. The ^{210}Pb was determined by gross beta counting of the PbCrO_4 precipitate, by using a low background gas flow proportional counter. The ^{210}Po was spontaneously deposited in a copper disk and determined by alpha spectrometry using a surface barrier detector.

Concentrations ranging from 6 mBq.L^{-1} to 1378 mBq.L^{-1} and from 3 mBq.L^{-1} to 494 mBq.L^{-1} were observed for ^{210}Pb and ^{210}Po , respectively. The doses were estimated in order to evaluate the relative importance of the ingestion of such radionuclides. Based upon measured concentrations, effective doses up to $2,8 \cdot 10^{-1} \text{ mSv.a}^{-1}$ and $2,0 \cdot 10^{-1} \text{ mSv.a}^{-1}$ were observed for ^{210}Pb and ^{210}Po , respectively. Doses up to $9,1 \text{ mSv.a}^{-1}$ and to $2,2 \text{ mSv.a}^{-1}$ were obtained for the critical organs.

SUMÁRIO

Página

1	INTRODUÇÃO.....	1
1.1	A radioatividade e o meio-ambiente.....	3
1.2	Distribuição dos radionuclídeos no ecossistema.....	7
1.3	Transporte dos radionuclídeos nos vários compartimentos do ecossistema.....	11
1.4	Incorporação de radionuclídeos naturais pelo homem.....	16
1.5	A radioatividade em águas subterrâneas.....	17
1.6	Objetivos.....	19
2	CARACTERÍSTICAS DOS RADIOISÓTOPOS ²¹⁰Pb E ²¹⁰Po.....	20
2.1	A sub-série do ²¹⁰ Pb.....	20
2.2	Fontes e níveis no ambiente.....	22
2.2.1	Solos.....	22
2.2.2	Atmosfera.....	23
2.2.3	Águas naturais.....	26
2.2.4	Plantas.....	28
2.3	Incorporação de ²¹⁰ Pb e ²¹⁰ Po pelo homem.....	29
2.3.1	Inalação.....	29
2.3.2	Ingestão.....	31
2.3.3	Doses absorvidas.....	36
2.4	Propriedades do chumbo.....	37
2.5	Propriedades do polônio.....	40
3	PARTE EXPERIMENTAL.....	42
3.1	Localização e características da área de estudo e das fontes analisadas.....	42

3.2	Considerações gerais sobre o método analítico para determinação de ^{210}Pb e ^{210}Po	45
3.3	Materiais e equipamentos.....	47
3.3.1	Reagentes.....	48
3.4	Metodologia.....	48
3.5	Definição de parâmetros para a determinação do ^{210}Pb	55
3.5.1	Estudo da reprodutibilidade e exatidão do método.....	55
3.5.2	Determinação da eficiência de contagem.....	57
3.5.3	Determinação da radiação de fundo do detector.....	59
3.5.4	Determinação do branco do processo.....	59
3.5	Determinação do limite inferior de detecção.....	61
3.6	Definição de parâmetros para a determinação do ^{210}Po	63
3.6.1	Estudo da reprodutibilidade do método.....	63
3.6.2	Determinação da curva de calibração energia em função do canal.....	65
3.6.3	Determinação da eficiência de contagem.....	65
3.6.4	Determinação da radiação de fundo do detector.....	66
3.6.5	Determinação do branco do processo.....	67
3.6.6	Determinação do limite de detecção.....	67
4	RESULTADOS.....	68
4.1	Determinação da concentração de ^{210}Pb	68
4.2	Determinação da concentração de ^{210}Po	70
4.3	Cálculos de dose.....	73
4.3.1	Determinação da dose equivalente para o ^{210}Pb	74
4.3.2	Determinação da dose equivalente para o ^{210}Po	74

5	ANÁLISES E DISCUSSÕES DOS RESULTADOS.....	76
6	CONCLUSÕES.....	85
7	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	87

1 INTRODUÇÃO⁽¹⁻³⁾

O interesse pelo tema da radioatividade ambiental cresceu em meados dos anos 60, quando as pesquisas centralizavam-se na investigação dos efeitos deletérios no homem, decorrentes das precipitações de materiais radioativos como consequência dos testes com armamentos nucleares.

Os testes eram na época realizados em sua maioria na superfície do globo, contribuindo para o aumento do nível de radioatividade ambiental de modo notável, causando assim em toda a população mundial uma inquietação sobre os possíveis riscos e danos às gerações presentes e futuras. Tais testes foram sendo aos poucos banidos, mas sem que a preocupação e apreensão diminuíssem, pois a habilidade em controlar e desta forma aproveitar a energia nuclear era possível.

Assim várias usinas nucleares foram surgindo como opção de fonte de energia e desta feita seu subproduto, as emissões de material radioativo para o meio ambiente, mais uma vez fazia-se presente.

Os radioisótopos produzidos nas explosões nucleares, bem como os liberados ao meio ambiente oriundos de atividades industriais e de pesquisa, em pouco tempo permearam a atmosfera, solos e aquíferos, alcançando a cadeia alimentar em tal extensão que a comunidade científica apreensiva e posteriormente o público em geral começaram a questionar o emprego da energia atômica e seu valor.

Assim organizações internacionais, entre elas a OMS (Organização Mundial da Saúde) recomendaram a realização de estudos em populações residentes em áreas de elevada radioatividade natural. Tais áreas deveriam oferecer oportunidades de investigações sobre as consequências no homem devido às exposições crônicas à radiação ionizante, sendo o aumento na incidência de câncer um dos principais efeitos possíveis e esperados em tais indivíduos.

Um hábito comum entre os romanos e que permanece muito difundido na atualidade devido às suas propriedades relaxantes eram os banhos em fontes de águas minerais que possuíam grandes quantidades de minerais dissolvidos. Com a descoberta do fenômeno da radioatividade há um século, tais águas minerais foram analisadas e algumas mostraram a presença de concentrações altas de radioelementos naturais, fato que proporcionou um aumento na procura pelos *spas* em todo o mundo, tornando-se uma moda a qual foi ainda mais valorizada pela descoberta da destruição de tecidos cancerosos através das radiações do rádio, anunciada naqueles anos.

Embora, fosse ainda desconhecida a causa, seus efeitos danosos já haviam sido registrados em meados do século XVI. Nesta época mineradores em busca de metais sucumbiam quando expostos à atmosfera do interior das minas. Somente no início do século XX, em uma das primeiras experiências sobre a radioatividade no meio ambiente, dois cientistas Elster e Geitel⁽²⁾ descobriram que o ar existente no interior das cavernas apresentava elevadas concentrações de radioatividade e que está provinha do solo. A doença fatal foi posteriormente diagnosticada como câncer de pulmão.

Como resultado cresceram as pesquisas visando determinar pequenas quantidades das várias substâncias radioativas e seus comportamentos entre os diversos compartimentos e componentes do ecossistema e assim avaliar o detrimento biológico no homem em consequência destas exposições.

1.1 A radioatividade e o meio ambiente⁽¹⁻⁸⁾

A terra e o homem sempre estiveram sujeitos à radiação ionizante. Na natureza existem duas fontes de radiação, uma natural e outra artificial.

A radioatividade natural decorrente das fontes naturais é constituída pelos raios cósmicos ou radiação cósmica e os radionuclídeos naturais. A radiação cósmica provém na sua maioria do espaço interestelar e das atividades solares. Ela é composta basicamente por prótons, com altas energias que ao atingirem átomos e moléculas da atmosfera, solo e água produzem radiações ionizantes secundárias como também novos radionuclídeos (^3H , ^{10}Be , ^{14}C , ^{22}Na , ^{32}P e ^{38}S). Estes são chamados, em virtude da sua origem, de cosmogênicos. São geralmente elementos leves (baixo número atômico), apresentam tempos de meias-vidas variando desde frações de segundo a 2,7 milhões de anos, sendo em sua maioria emissores de partículas beta mas que também emitem radiação gama e raios-X.

Além dos cosmogênicos, os radionuclídeos naturais são constituídos por aqueles que apresentam tempos de meias-vidas grandes o suficiente quando comparados com a idade da terra (4,5 bilhões de anos). Estes radionuclídeos são chamados de primordiais e foram originados durante o processo de formação do Universo.

Os radionuclídeos primordiais são convenientemente classificados conforme sua ocorrência. Assim existem os que ocorrem isoladamente e que decaem diretamente para um nuclídeo estável e aqueles pertencentes a uma série de decaimento radioativo, os quais decaem através de uma seqüência de radionuclídeos com diferentes tempos de meias-vidas até um isótopo estável de chumbo.

Entre os que ocorrem isoladamente, pelo menos 22 tem sido identificados sendo que a maioria apresenta tempos de meias-vidas longos, abundância isotópica e elementar pequenas e baixa assimilação e concentração biológica, tornando-os dosimetricamente insignificantes.

Do ponto de vista biológico somente dois são importantes: o ^{40}K e o ^{87}Rb . O potássio é um elemento essencial à vida, possui três isótopos de ocorrência natural com números de massa variando entre 39 e 41, dos quais somente o ^{40}K é radioativo, sendo encontrado em toda matéria e seres. O ^{87}Rb , por ser também um metal alcalino, pode deslocar quimicamente o potássio presente em organismos vivos.

Os radionuclídeos primordiais pertencentes às séries de decaimento radioativo são encontrados na natureza agrupados em três séries: a série do urânio originada pelo ^{238}U , a série do tório originada pelo ^{232}Th e a série do actínio originada pelo ^{235}U (figuras 1a, 1b e 1c)⁵.

A outra fonte de radiação na natureza é devida às fontes artificiais. Estas são relacionadas com o emprego da energia nuclear para os mais variados fins: armas militares, produção de energia elétrica por meio de reatores nucleares de potência e o ciclo do combustível nuclear, o uso de radioisótopos na medicina, entre outros. Ao serem liberados na biosfera os radioelementos provenientes de atividades humanas vão contribuir para o aumento da radiação no meio.

A radiação decorrente dos radionuclídeos naturais, heterogeneamente distribuídos pela litosfera, hidrosfera e atmosfera, juntamente com a radiação cósmica, compõe a chamada radiação de fundo, à qual o globo e os seres vivos estão submetidos continuamente.

As fontes naturais são as principais fontes de exposição à radiação da população. Um aumento desta exposição à radiação natural pode vir a ocorrer também em razão da localidade, atividade e mesmo do estilo de vida dos indivíduos.

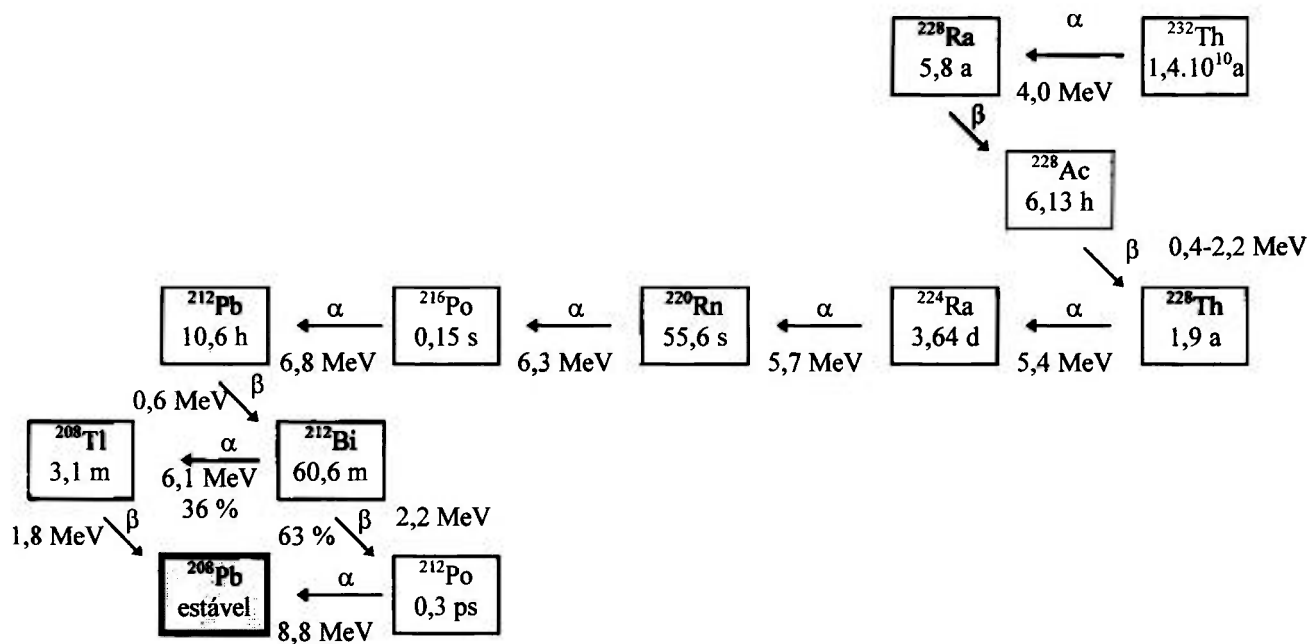


Figura 1a - Série de decaimento do ^{232}Th

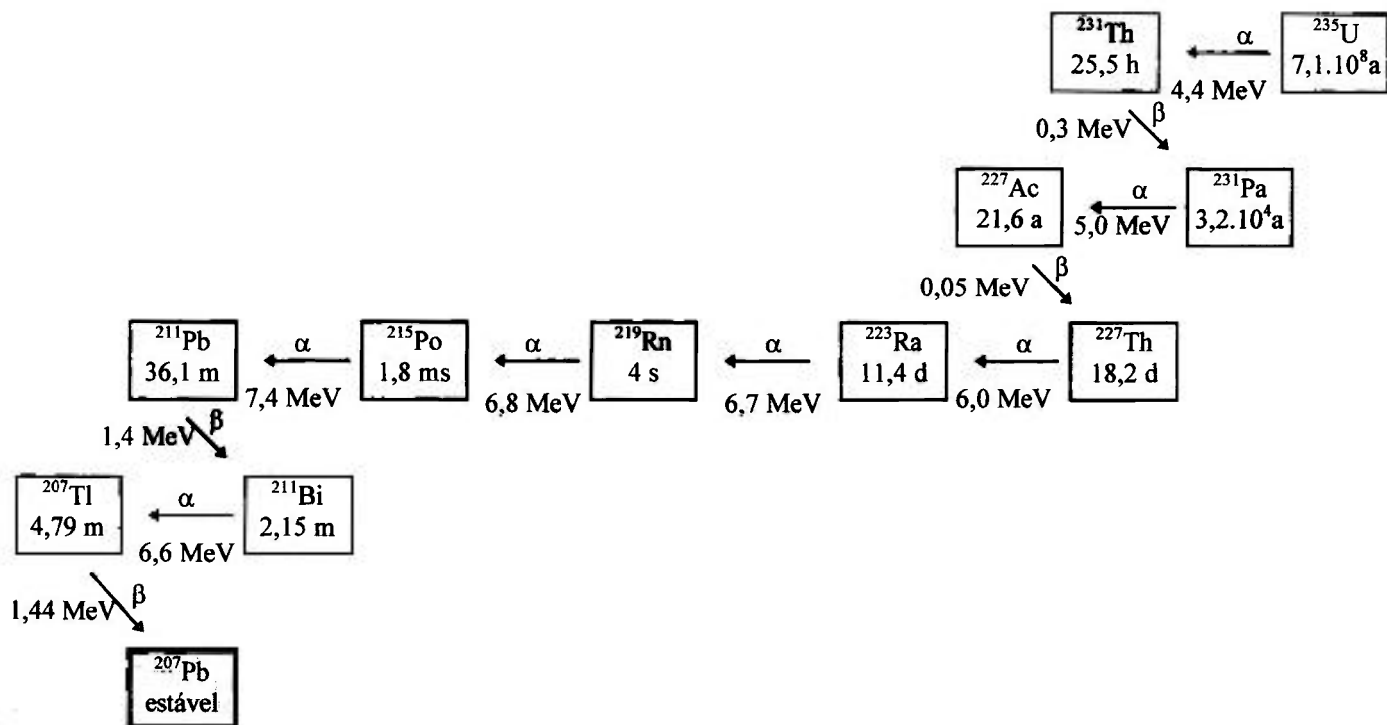


Figura 1b - Série de decaimento do ^{235}U

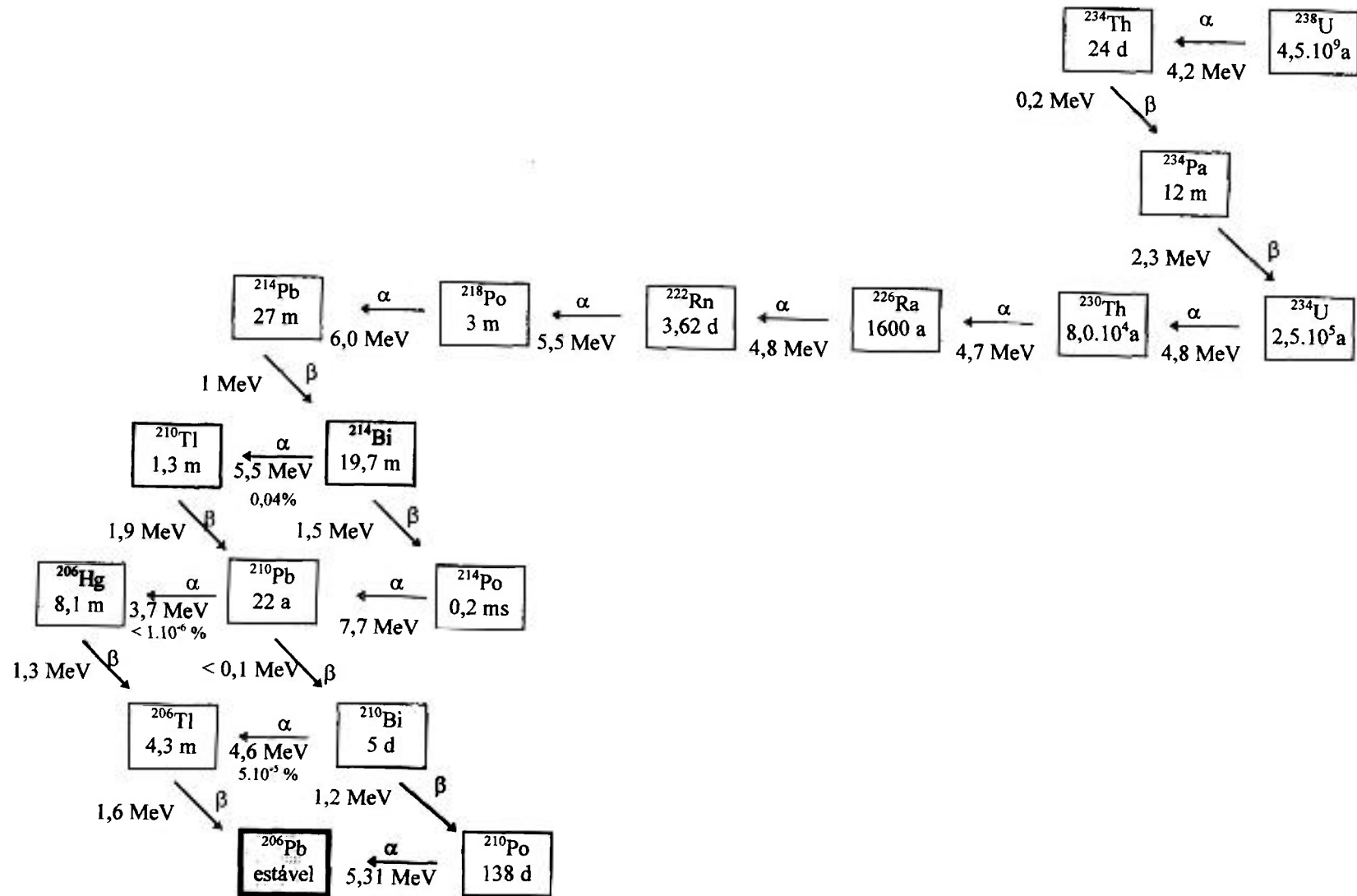


Figura 1c - Série de decaimento do ^{238}U

1.2 Distribuição dos radionuclídeos no ecossistema

Embora onipresente, as concentrações dos radionuclídeos naturais variam substancialmente com a localização. A litosfera é o principal reservatório.

Os radionuclídeos das séries do ^{232}Th e ^{238}U juntamente com o ^{40}K contribuem para a maior parte da radioatividade das rochas. As concentrações típicas destes radionuclídeos presentes em rochas e solos encontram-se na tabela 1.

Urânio, tório e potássio são metais facilmente oxidáveis e por apresentarem óxidos de densidade relativamente baixa se concentram preferencialmente na crosta da terra ao invés do denso manto ou núcleo⁽⁹⁻¹¹⁾.

O conteúdo dos radionuclídeos nas rochas é uma função da sua história geológica, variando assim consideravelmente entre os vários tipos de formações. Algumas variações aparecem associadas com tipos específicos de formações e certos minerais, enquanto que outras parecem ser rigorosamente regionais com pouca correlação com o tipo de rochas e minerais. Contudo certas generalizações podem ser feitas, por exemplo, verifica-se que as rochas ígneas geralmente exibem uma radioatividade maior do que as rochas sedimentares, enquanto que as rochas metamórficas possuem concentrações típicas das rochas das quais foram originadas.

Nas rochas ígneas a radioatividade está relacionada com a quantidade de silicatos, sendo maior em rochas ácidas ($\text{SiO}_2 > 65\%$ - *e.g.* granito) e menor nas rochas básicas (SiO_2 52%-45%- *e.g.* basalto) e ultrabásicas ($\text{SiO}_2 < 45\%$ - *e.g.* dunitos).

Certas rochas sedimentares, incluindo alguns xistos e rochas fosfáticas são altamente radioativas, enquanto que outros tipos, normalmente de calcários e vários evaporitos (halita e gypsum) apresentam baixo conteúdo de radionuclídeos.

Os minerais que apresentam radioatividade moderada a alta em ordem decrescente de abundância em rochas ígneas são: zircão, allanita, monazita, xenotímio, torita, pirocloro, e autanita. Boa parte da radioatividade das rochas ígneas é atribuída aos minerais acessórios comuns de radioatividade média: zircão, esfênio e apatita. Os minerais de radioatividade alta: monazita, allanita e pirocloro são muito menos abundantes do que os minerais acessórios comuns, mas sua distribuição irregular em rochas ígneas pode resultar em áreas de radioatividade alta.

Como consequência da distribuição heterogênea, ocorre que certas localidades no globo terrestre apresentam concentrações mais altas de radionuclídeos naturais de tal forma que os níveis de exposição à radiação gama (oriunda de fontes naturais terrestres) podem superar em mais de 10 vezes os valores médios verificados em outras regiões (tabela 2). Estas áreas localizadas no Brasil, Índia, Irã, Itália e outros países estão associadas à presença de minerais-minérios tanto de urânio como de tório.

Estudos sugerem que cerca de 95% da população mundial vive em áreas onde a taxa de dose anual média varia entre 0,3 a 0,6 mSv⁽¹²⁾. Os níveis de exposição à radiação de fontes naturais em áreas normais e anômalas são apresentados na tabela 3.

No Brasil, além de Guarapará (175 mSv.a⁻¹) valores anormais de taxa de dose ocorrem também em Poços de Caldas (250 mSv.a⁻¹)⁽¹²⁾.

Tabela 1 - Concentrações de ^{40}K , ^{232}Th e ^{238}U em rochas e solos^(5,7)

Rocha	^{40}K ^a	^{232}Th ^b	^{238}U ^b
Ígneas			
Granitos	3,3	20,0	4,7
Dioritos	2,3	8,0	1,8
Basalto	0,8	2,7	0,9
Dunitos	0,5	6,0	0,03
Sedimentares			
Calcários	0,3	1,7	2,2
Carbonáticas		1,9	2,1
Arenitos	1,2	3,0	1,5
Xisto	2,3	11,0	3,5
Crosta ^c	2,3	10,7	2,8
Solos	1,5	9	1,8

a - percentagem

b - ppm (parte por milhão)

c - valor médio

Tabela 2 - Níveis de Exposição à Radiação Natural⁽³⁾

Localidade	Taxa de Exposição (mSv.a ⁻¹)
Baía Clallam (E.U.A.)	0,24
Típico nos E.U.A.	0,60
Denver (E.U.A.)	1,2
Kerala (Índia)	16
Floresta Negra (Alemanha)	18
Central City (E.U.A.)	22
Guarapari (Brasil)	175
Porção da Rússia	700

Tabela 3 - Dose efetiva anual média de fontes naturais de radiação ionizante⁽¹³⁾

Componente de exposição	dose efetiva (mSv)	
	áreas de radiação de fundo normal	áreas de exposição elevada
Raio Cósmicos	0,38	2,0
Radionuclídeos Cosmogênicos	0,01	0,01
Radiação terrestre: exposição externa	0,46	4,3
Radiação terrestre: exposição interna (excluindo Rn)	0,23	0,6
Radiação terrestre: exposição interna Rn e descendentes		
Inalação ²²² Rn	1,2	10
Inalação ²²⁰ Rn	0,07	0,1
Ingestão ²²² Rn	0,005	0,1
Total	2,4	

1.3 Transporte dos radionuclídeos nos vários compartimentos do ecossistema

O transporte de radionuclídeos naturais e seus descendentes pelo meio ambiente é influenciado por muitos fatores incluindo as propriedades químicas dos nuclídeos, fatores físicos do ecossistema e atributos fisiológicos e ecológicos da biota.

Os radionuclídeos precursores das séries naturais estão presentes no ambiente em concentrações raramente superiores a poucas dezenas de Bq.kg^{-1} ou Bq.L^{-1} , o mesmo acontecendo com seus descendentes. Ocorre que as propriedades químicas dos nuclídeos não prevalecem e o comportamento de diminuta massa segue a ação de processos físicos: força eletrostática, adsorção, oclusão, difusão e partição.

Em um sistema fechado, uma rocha ou mineral por exemplo, os descendentes podem crescer até atingirem a mesma atividade de seus precursores, ou seja um equilíbrio radioativo.

Entretanto os produtos de decaimento intermediários possuem diferentes propriedades químicas e na série do ^{238}U , em especial, os tempos de meias-vidas são longos o suficiente para permitir separações significativas de seus precursores, por meio de processos físicos, químicos e biológicos. Tais diferentes características podem ser comumente notadas na ausência do equilíbrio radioativo em amostras ambientais.

As séries de decaimento tem sido divididas em sub-séries de acordo com a combinação de propriedades dos radionuclídeos, suas distribuições na geosfera, propriedades químicas e seus parâmetros metabólicos na biosfera.

Assim, a série do ^{238}U é dividida em cinco sub-séries ou grupos: ⁽¹⁴⁾

a) ^{238}U , dois nuclídeos de meia-vida curta (^{234}Th e ^{234}Pa) e ^{234}U , formam a primeira sub-série na qual a razão isotópica $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ varia amplamente entre as várias matrizes.

b) ^{230}Th , caracteriza-se pela inatividade química de seus compostos de íons tetravalentes, tendendo a não migrar com os isótopos de urânio precursores.

c) ^{226}Ra , é freqüentemente separado de seu precursor.

d) ^{222}Rn e seus descendentes de tempos de meias-vidas curtos (até ^{214}Po). Esta sub-série é importante do ponto de vista da radiação externa por causa dos raios gama altamente energéticos emitidos através do decaimento do ^{214}Bi , sendo também importante do ponto de vista da irradiação interna.

e) ^{210}Pb , ^{210}Bi e ^{210}Po compõem o grupo dos produtos de decaimento com tempos de meias-vidas longos do radônio, sendo o ^{206}Pb estável o último produto de decaimento.

Como produto do intemperismo das rochas surgem os solos e a redistribuição de todos os nuclídeos das séries radioativas do urânio e tório, bem como do potássio.

Nos solos a variação das concentrações dos radionuclídeos está relacionada com a localização geográfica, origem geológica, ou seja a concentração dos radionuclídeos na rocha original, características físico-químicas, aspectos climatológicos e hidrológicos, atividades agrícolas, bem como o tipo, a intensidade e duração do intemperismo subsequente.

Conforme o intemperismo proporciona a redistribuição ou alteração de minerais que contenham radionuclídeos, o equilíbrio radioativo estabelecido no leito rochoso é desfeito.

O desequilíbrio ocorre prontamente e de forma mais acentuada para os descendentes do radônio por causa de seu escape.

O radônio é um membro intermediário gasoso presente em cada uma das três séries radioativas naturais e por ser um produto de decaimento do rádio, é produzido em qualquer meio que o contenha. Assim, nos solos os radionuclídeos descendentes do rádio variam inversamente com o grau de emanção do radônio.

Em geral, os solos apresentam valores de radioatividade inferiores aos das rochas. Uma vez presentes no solos, os radionuclídeos podem ser absorvidos por plantas, através das raízes, sendo somente os mais solúveis prontamente assimilados.

Lentamente os solos podem ter as concentrações dos radionuclídeos reduzidas por lixiviação, o que justifica em parte o fato de apresentarem concentrações inferiores às de suas matrizes originais.

Os radionuclídeos eletrostaticamente aderidos às pequenas partículas de solo da superfície podem ser transferidas pelo vento, através da atmosfera sob a forma de poeira ou aerossóis até as plantas e animais. A importância deste mecanismo varia conforme o clima, o solo e a vegetação rasteira.

Ao consumirem vegetais, os herbívoros ingerem também os radionuclídeos, sendo assimilados apenas os mais solúveis.

A decomposição de plantas e animais, bem como os seus produtos finais de metabolismo proporcionam o retorno de parte dos radionuclídeos aos solos.

O radônio por ser um gás nobre ou seja inerte, juntamente com seus isótopos são capazes de se deslocarem dos locais onde foram gerados durante suas curtas existências. Seu escape ocorre na forma de um íon de recuo com conseqüente difusão do átomo neutro através dos poros internos do grão do mineral e posterior difusão e transporte intergranular na matriz sólida (rocha ou solo) permeável. Esta migração ocorre na direção das águas subterrâneas, das camadas superiores do solo e destes, finalizam por difusão para a atmosfera, antes de seu decaimento radioativo⁽¹⁵⁾. Na ausência deste processo, a emanção, as séries de desintegrações ocorreriam completamente no interior das rochas e solos e a radioatividade no ar seria mínima.

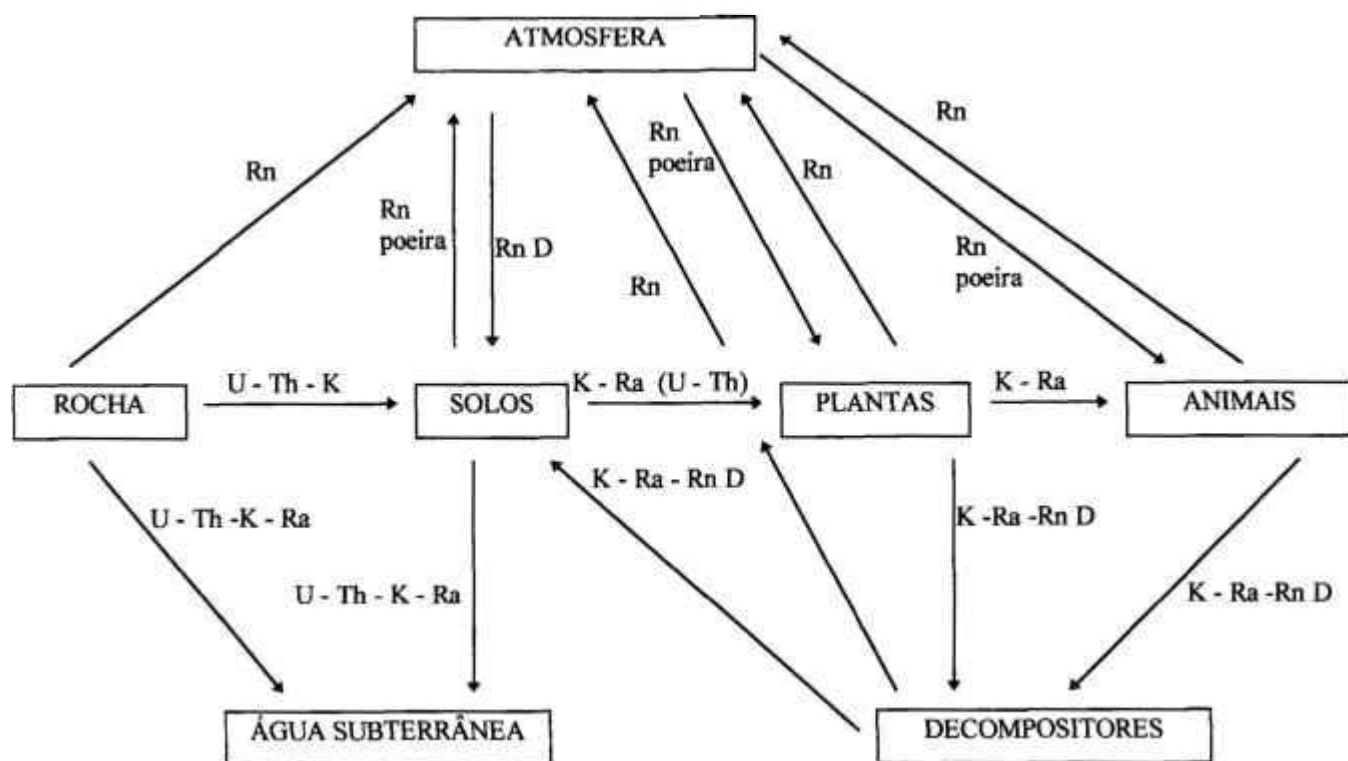
A radioatividade presente na atmosfera é atribuída aos radioelementos cosmogênicos e principalmente aos intermediários gasosos ^{219}Rn , ^{220}Rn , ^{222}Rn e seus respectivos produtos de decaimento.

As concentrações dos isótopos de radônio no ar variam muito e são determinadas por várias condições. Entre as mais importantes estão as concentrações dos precursores no solo, a porosidade, o tamanho de grão e umidade do solo, as condições atmosféricas (temperatura e pressão) e estação climática (chuva, seca e neve). Assim em cavernas, grutas e galerias de mineração onde as condições são estáveis e há pouca circulação de ar, as concentrações de radônio podem crescer alcançando níveis altos.

Os diferentes tempos de meias-vidas dos isótopos ^{219}Rn - 4s, ^{220}Rn - 55s e ^{222}Rn - 3,8d proporcionam uma diferença entre as suas concentrações e de seus descendentes na atmosfera, resultando numa maior concentração atmosférica de ^{222}Rn do que os demais.

Ao desintegrar-se o ^{222}Rn forma uma das sub-séries de decaimento na qual estão o ^{210}Pb , ^{210}Bi e o ^{210}Po . Estes apresentam tempos de meias-vidas relativamente longos e uma vez formados podem aderir-se às partículas de poeira e serem transportados para plantas e animais ou ainda podem por meio de precipitações atmosféricas retornarem ao solo.

A distribuição heterogênea dos radionuclídeos e sua circulação na biosfera (figura 2) fazem com que o homem seja constantemente irradiado de duas formas, em uma delas a substância radioativa ou a irradiação esta presente "externamente", na outra as substâncias radioativas podem ser inaladas, com o ar, ou ingeridas por meio de alimentos e água, e desta forma agregar-se aos tecidos e órgãos internos irradiando o homem "internamente". Os radionuclídeos naturais contribuem para ambas as formas.



Símbolos: U - isótopos de urânio Th - isótopos de tório
 K - ^{40}K Ra - isótopos de rádio
 Rn - isótopos de radônio RnD - descendentes do Rn

Figura 2 - Diagrama compartimental mostrando as principais vias de transporte dos radionuclídeos primordiais e descendentes no ecossistema terrestre

1.4 Incorporação de radionuclídeos naturais pelo homem

O interesse por radionuclídeos naturais é usualmente motivado pela preocupação com seus possíveis efeitos biológicos.

Para a proteção radiológica os isótopos de maior interesse são aqueles que apresentam tempos de meias-vidas longos, entre os quais estão os isótopos naturais do urânio e tório e alguns de seus descendentes. Estes radionuclídeos mais pesados são particularmente interessantes pois estão amplamente espalhados pela biosfera e a maioria dos produtos de decaimento são emissores alfa, cujas partículas são emitidas com altas energias.

Estas partículas, pesadas e energéticas, são altamente ionizantes e por isso apresentam um curto alcance e como consequência seus efeitos biológicos são maiores fazendo com que os radionuclídeos primordiais quando depositados internamente no homem contribuam significativamente para a dose total.

Os nuclídeos radioativos que ocorrem naturalmente em nosso ambiente adentram no corpo humano principalmente através da dieta, ou seja pela ingestão de alimentos e água.

A inalação é outra via importante pela qual o radônio e seus descendentes ingressam nos organismos, principalmente de fumantes e mineradores.

Devido a variação do conteúdo dos radionuclídeos naturais no ambiente e na dieta, os níveis de elementos radioativos introduzidos e conseqüentemente as concentrações correspondentes no corpo humano podem variar de lugar para lugar e em uma determinada localização e tempo, variações também ocorrem como resultado de mudanças na dieta.

1.5 A radioatividade em águas subterrâneas

Dentre as várias formas de intemperismo que ocorrem em rochas e solos, a principal é a circulação de águas, sendo o mecanismo mais eficiente para a transferência de radionuclídeos e ao mesmo tempo um veículo para sua ingestão.

Por meio da lixiviação e percolação através de solos e rochas que contenham minerais e elementos radioativos as águas subterrâneas incorporam radionuclídeos de várias formas sendo a dissolução de urânio e rádio e a difusão do radônio as principais.

A dissolução dos radionuclídeos e seus descendentes varia de acordo com as características físico-químicas tanto de solos e rochas como também da própria água. As principais são o pH (potencial hidrogeniônico), temperatura, potencial oxido-redutor (muito próximo ao conteúdo de oxigênio dissolvido), concentração de sólidos dissolvidos e a taxa de fluxo de água⁽⁵⁾.

A dissolução ocorre pela infiltração da água que é facilitada quando as rochas apresentam microfaturas. Os minerais que são mais facilmente atacados são aqueles que contém elementos alcalinos ou alcalinos terrosos, tais como as micas e feldspatos.

Sob tais variantes o estabelecimento de equilíbrio isotópico entre os nuclídeos precursores e descendentes nas interfaces solo-rocha em contato com a água circulante é pouco provável, uma vez que os diferentes nuclídeos apresentam solubilidades diferentes e o radônio migra muito mais facilmente para a fase aquosa que qualquer outro radionuclídeo.

Entre os vários elementos radioativos presentes em águas o radônio é o mais abundante, sendo o isótopo ^{222}Rn o mais facilmente encontrado, como consequência de seu tempo de meia-vida razoavelmente longo em relação ao de outros isótopos.

As concentrações dos radionuclídeos naturais em águas naturais, tal como nos solos, apresentam amplas variações, sendo várias ordens de grandeza menor do que nas matrizes sólidas (rochas e solos).

Em muitos países como no Brasil, as regiões de altos níveis de radiação natural estão associadas a centros de saúde e *spas* com infra-estrutura voltada para as práticas de banhos com águas das fontes, acompanhados de sessões de hidroterapia e banhos com lama, além da abundante ingestão de água mineral oriunda de tais fontes⁽¹⁶⁾. Tais águas minerais radioativas são exploradas comercialmente⁽¹⁷⁾ e diretamente consumidas em grande escala não apenas pela população local como também por turistas que acreditam em seus efeitos benéficos. Entretanto, as águas comercializadas tem pouca significação no que se refere à exposição de seres humanos, pois a radioatividade presente é algumas ordens de grandeza inferior àquela existente na fonte⁽¹⁶⁻¹⁸⁾.

No Estado de São Paulo, entre as várias fontes existentes, as que possuem águas minerais radioativas situam-se em áreas caracterizadas pelos altos níveis de radiação natural.

Situada nas proximidades do Planalto de Poços de Caldas, região caracterizada pela presença de minerais radioativos associados às rochas, está a cidade de Águas da Prata onde são encontradas várias fontes cujas águas minerais apresentam os maiores teores de radioatividade no Estado⁽¹⁹⁾.

1.6 Objetivos

O estudo de regiões que apresentam níveis elevados de radiação natural tem sido nos últimos anos de grande interesse para se estabelecer e estimar as taxas de dose externas e internas nas populações locais cronicamente expostas aos radionuclídeos presentes no solo, água, alimentos e ar. A determinação da taxa de dose interna devido a emissores de partículas alfa é realizada a partir da medida das concentrações dos radionuclídeos presentes em amostras usualmente disponíveis (alimentos, ar e água.)⁽²³⁾.

Este trabalho faz parte de uma pesquisa mais ampla a qual tem por objetivo avaliar o risco decorrente da ingestão de água mineral contendo radionuclídeos naturais, em particular os que pertencem à série de decaimento do ^{238}U .

Vários estudos já foram realizados em águas das fontes do município de Águas da Prata, nestas análises foram determinados vários radionuclídeos entre os quais ^{238}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th e $^{228}\text{Th}^{(20)}$, ^{226}Ra e $^{228}\text{Ra}^{(21)}$, $^{222}\text{Rn}^{(22)}$ e $^{210}\text{Pb}^{(21)}$. Entretanto, não existem dados na literatura referentes à determinação de ^{210}Po nessas águas minerais radioativas. Por conseguinte tem-se como objetivos:

- Verificar a existência do radioisótopo ^{210}Po nestas águas minerais;
- Determinar a sua concentração, bem como a de seu precursor o ^{210}Pb e com isso verificar uma eventual relação entre ambos;
- Verificar uma possível influência sazonal na concentração desses radionuclídeos ao longo de um ano;
- Avaliar a contribuição para a dose no indivíduo que as consomem, uma vez que ^{210}Pb e ^{210}Po são radionuclídeos relevantes em termos de radioproteção.

2 CARACTERÍSTICAS DOS RADIOISÓTOPOS ^{210}Pb E ^{210}Po (24-33)

2.1 A sub-série do ^{210}Pb

O radioisótopo ^{210}Pb juntamente com seus descendentes o ^{210}Bi e ^{210}Po constituem a última sub-série da série de decaimento do ^{238}U , finalizada pelo ^{206}Pb estável. Esta cadeia é também nomeada por produtos de decaimento do ^{222}Rn de meia vida-longa.

O ^{210}Pb e o ^{210}Po apresentam tempos de meias-vidas considerados relativamente longos 22,3 anos e 138,4 dias, respectivamente, e podem assim acumular-se em vegetais e animais.

O ^{210}Bi em vista do seu tempo de meia-vida curto de somente 5 dias, está quase sempre em equilíbrio com seu antecessor nos vários compartimentos do ambiente e do corpo humano.

Esta sub-série representa um componente significativo de dose por irradiação interna e contribui com as mais altas doses de radiação no homem (tabela 4), por se acumular preferencialmente em tecidos ósseos.

As concentrações do ^{210}Po no meio ambiente e também no homem estão usualmente relacionadas com as do ^{210}Pb , o qual é seu precursor e atua como um carregador.

Tabela 4 - Sumário de taxa de dose equivalente anual decorrente de radionuclídeos naturais presentes no corpo⁽⁵⁾

Radionuclídeo	Taxa de Dose equivalente ($\mu\text{Sv}\cdot\text{a}^{-1}$)			
	Tecidos moles	Osso		
		Células ósseas	Superfícies	Medula
^{14}C	10	8	8	30
^{40}K	180	60	140	270
^{87}Rb	3	10	14	7
^{238}U sub-séries	4,6	6,4	3	0,4
^{230}Th	0,1	12	6	1
^{226}Ra	3	170	90	15
^{222}Rn	7	-	14	14
^{210}Pb - ^{210}Po	140	1400	700	140
^{232}Th	0,1	4,2	2	0,4
^{228}Ra - ^{228}Th	1,5	250	120	22
^{220}Rn	<0,1			
Total aprox.	350	1900	1100	500

2.2 Fontes e níveis no ambiente

Os radioisótopos ^{210}Pb e ^{210}Po são produtos de decaimento da série do ^{238}U , o qual é a única fonte natural destes nuclídeos na crosta terrestre, sendo que suas existências na biosfera estão relacionadas à presença do próprio urânio bem como à de seus descendentes, associados ao movimento e transporte destes pelos diversos componentes do ecossistema.

Nas rochas ígneas são encontrados em média 15 ppm de chumbo e $3 \cdot 10^{-10}$ ppm de polônio⁽³²⁾. Suas abundâncias variam de forma tão ampla nos vários meios que um valor representativo da abundância isotópica natural para cada um não pode ser definido.

O polônio é um elemento natural muito raro sendo somente encontrados 100 μg de ^{210}Po em uma tonelada de minério de urânio.

2.2.1 Solos

Verifica-se que o ^{210}Pb presente no solo não está em equilíbrio com o ^{226}Ra e que a camada superior do solo (3-10 cm) apresenta uma concentração de 20 a 200 vezes maior do que a concentração de ^{226}Ra ⁽²⁵⁾, o que indica que a principal fonte de ^{210}Pb não é a presença do ^{226}Ra mas a precipitação atmosférica (chuva, neve e particulados) deste e de seu descendente (^{210}Po) presentes na atmosfera.

A razão $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ em solos varia entre 0,75 e 0,96 o que sugere que o ^{210}Pb no solo é a principal fonte de ^{210}Po ⁽²⁵⁾.

Os níveis de ambos nos solos dependem de muitos fatores, medidas realizadas em solos encharcados apresentam valores de 14 Bq.kg^{-1} e 16 Bq.kg^{-1} para ^{210}Pb e ^{210}Po , respectivamente.

2.2.2 Atmosfera

O conteúdo dos radionuclídeos ^{210}Pb e ^{210}Po na atmosfera é devido à emissão do ^{222}Rn da superfície terrestre. Conseqüentemente as concentrações de ambos dependem da latitude e da distribuição de terras e oceanos. Assim as concentrações são menores em regiões tropicais e polares e maiores em latitudes subtropicais e temperadas, e por sua vez as concentrações no hemisfério sul são menores do que no hemisfério norte uma vez que a área total terrestre da qual o radônio difunde é menor.

As concentrações atmosféricas de ^{210}Pb e ^{210}Po ao nível do solo em latitudes médias do hemisfério norte são $0,5 \text{ mBq.m}^{-3}$ e $0,04 \text{ mBq.m}^{-3}$ ⁽²⁴⁾, respectivamente. A razão $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ varia entre 0,07 a 0,45 e é maior na primavera e outono do que no verão e inverno ⁽²⁵⁾.

Os tempos de residência dos radionuclídeos ^{210}Pb e ^{210}Po variam de 4 a 45 dias nas camadas inferiores da atmosfera ^(25, 32, 33, 47) e de 1 a 2 anos nas superiores, acima da troposfera ⁽⁴⁷⁾.

Os valores menores são resultantes da deposição gravitacional e eletrostática bem como da difusão ou mesmo ainda de precipitações atmosféricas, tais como a chuva e neve, pelas quais o ^{210}Pb e ^{210}Bi retornam à superfície como partículas de aerossóis. Embora o ^{210}Pb apresente um tempo curto de residência, algum ^{210}Po também é formado na atmosfera retornando à superfície sob a mesma forma que os precursores. Além da emissão do ^{222}Rn da superfície terrestre existem também outras fontes possíveis as quais liberam ^{210}Pb e ^{210}Po para atmosfera.

Os diferentes tempos de residências para ambos radionuclídeos entre as camadas da atmosfera levam a uma diferença entre as razões isotópicas $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$, mas um valor próximo à unidade, indicando um equilíbrio, pode ocorrer em altitudes maiores.

Entre as outras vias naturais, pelas quais ^{210}Pb e ^{210}Po atingem a atmosfera estão as erupções vulcânicas onde são liberados cerca de $44,4 \text{ TBq.a}^{-1}$ de ^{210}Pb e $1,85 \text{ PBq.a}^{-1}$ de ^{210}Po sob a forma de compostos voláteis de chumbo, bismuto e polônio⁽²⁴⁾, os exudatos vegetais que contribuem com 17 TBq.a^{-1} na forma de material orgânico volátil⁽³³⁾ e a queima de florestas a qual introduz 370 GBq.a^{-1} de ^{210}Po ⁽³³⁾.

Ambos ^{210}Pb e ^{210}Po são voláteis o suficiente para serem liberados para a atmosfera pela queima de combustíveis fósseis. Estima-se que a queima de carvão libere $2,59 \text{ TBq.a}^{-1}$ de ^{210}Pb ⁽²⁶⁾ e $0,37 \text{ TBq.a}^{-1}$ de ^{210}Po ⁽³³⁾.

Entre as artificiais, a liberação de ^{210}Pb e ^{210}Po para a atmosfera ocorre principalmente em usinas processadoras de minério, uma vez que o urânio se faz presente em níveis altos em certas rochas.

A extração e o processamento de minérios para a obtenção de metais como o zinco, o cobre, o chumbo, o alumínio e o próprio urânio resultam no acúmulo de resíduos e refugos os quais contém quantidades consideráveis de urânio e de produtos de decaimento, que podem atingir a biosfera (tabela 5).

Tabela 5 - Emissões por processamentos de minérios⁽²⁴⁾

Minério	²¹⁰ Pb (mBq.a ⁻¹)	²¹⁰ Po (mBq.a ⁻¹)
Zn	20	2
Cu	7000	7000
Pb	1.10 ⁶	1.10 ⁶
Al	1200	1000

2.2.3 Águas Naturais

Em águas pluviais o conteúdo de ^{210}Pb e ^{210}Po é devido à precipitação de aerossóis radioativos presentes no ar. A concentração de ^{210}Po em águas de chuvas varia entre 3,7 e 70,3 mBq.L^{-1} e a razão $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ também varia consideravelmente entre 0,1 e 0,54⁽²⁵⁾. Estas flutuações nas concentrações de ^{210}Po em tais águas são atribuídas ao fato de que a radioatividade natural da chuva depende da altitude onde as gotas se formaram. Na neve, outra forma de precipitação atmosférica, as concentrações são similares, o que sugere não existir uma variação significativa dos dois radionuclídeos entre as duas formas de precipitações.

Em águas superficiais a presença de ambos é resultado principalmente da deposição e precipitação atmosférica e em parte do lixiviamento de materiais da vizinhança. As concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas superficiais não são constantes e dependem de condições sazonais, sendo de uma a três ordens de grandeza menores do que as águas pluviais⁽²⁵⁾.

A concentração de ambos em águas superficiais de rios e de reservatórios abertos variam entre 3,1 e 248 mBq.L^{-1} para o ^{210}Pb , sendo cerca de 2 a 100 vezes maior do que em oceanos⁽²⁶⁾, e entre 0,60 e 2,6 mBq.L^{-1} para o ^{210}Po , enquanto que em oceanos esta variação é maior entre 0,2 e 8,1 mBq.L^{-1} ⁽²⁵⁾.

As concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas potáveis (rede pública) varia amplamente conforme a fonte, pois a água consumida em diferentes partes do globo pode ser de origem pluvial, fluvial e subterrânea, tratadas ou não.

Os valores de concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas potáveis (incluindo as engarrafadas) estão relacionados juntamente com a localização da fonte na tabela 6.

Tabela 6 - Níveis de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas potáveis

Localidade da fonte	^{210}Pb (mBq.L ⁻¹)	^{210}Po (mBq.L ⁻¹)	referência
EUA	1,11 ^a		25
		0,37-48 ^a	26
	107,7 ^c	37-95000 ^c	34
		16000-20000 ^c	35
		0,37-140 ^c	36
		7733-22459 ^c	37
		0,04-2,22 ^c	38
5,97-8,68 ^c	21900-22500 ^c	39	
Rússia	1,11 ^a		25
		2,03 ^a	25
	3,5 ^a	1,77 ^a	32
Japão		23-555 ^c	25
Polônia	33-74 ^c		26
França	37-259 ^c		26
Alemanha		0,1 ^a	40
	3-6 ^a	0,42-3,33 ^a	41
	3,3-32 ^b	0,7-8,9 ^b	42
Itália	7,4-200 ^b		42
Brasil	<50-190 ^b		18
Portugal	2-392 ^{b,c}		43
Finlândia	20-80 ^c	10-40 ^c	44
Suíça	1-90 ^b	1-90 ^b	45
Austrália	<80 ^b		46

a - Abastecimento c - Poços

b - Engarrafada d - Rios

As elevadas concentrações encontradas para o ^{210}Po em águas potáveis são ocorrências registradas em localidades específicas dos E.U.A., concentrações normais em diversas fontes de outras partes deste país não superam a 140 mBq.L^{-1} .

Os radionuclídeos naturais mais analisados em águas minerais são ^{222}Rn , ^{226}Ra e o ^{210}Pb .

2.2.4 Plantas

A presença de ^{210}Pb e ^{210}Po em plantas é devida à precipitação atmosférica do ^{210}Pb aderido em partículas de aerossóis sobre as superfícies das plantas e também pela absorção através das raízes.

A importância relativa destas duas vias é controvertida, entretanto a maioria dos estudos asseguram ser a precipitação a principal via de incorporação de ambos. Tal fato é verificado em vegetais tais como os líquens, que por não possuírem sistemas de raízes são nutridos através da absorção de água e de nutrientes depositados sobre suas superfícies. Em contrapartida, estudos em plantas de tabaco apontam a absorção pelas raízes como a principal via de assimilação.

A concentração de ^{210}Po em plantas em condições normais varia amplamente entre $0,04$ e 111 mBq.g^{-1} de material seco, apresentando um valor médio de $11 \text{ mBq.g}^{-1(25)}$. Em folhas de tabaco a variação é de $5,6$ a 102 mBq.g^{-1} de material seco⁽²⁵⁾. Em líquens as variações das concentrações de ambos são maiores de $22,2$ a 2575 Bq.kg^{-1} para o ^{210}Pb e entre 205 e 278 Bq.kg^{-1} para o ^{210}Po ⁽⁴⁷⁾.

2.3 Incorporação de ^{210}Pb e ^{210}Po pelo homem

Teoricamente existem várias vias de transferência pelas quais o organismo humano pode assimilar o ^{210}Pb e o ^{210}Po .

Nota-se pela figura 3 que as principais vias de assimilação de ^{210}Pb e ^{210}Po são através da inalação de aerossóis e particulados presentes no ar atmosférico e da ingestão de água e de alimentos.

A contribuição de outras fontes tais como a assimilação e acúmulo de ^{226}Ra no esqueleto e o decaimento do ^{222}Rn dissolvido nos fluidos corpóreos são relativamente insignificantes.

Em populações onde os níveis de exposição são normais, os alimentos são as principais fontes de assimilação de ^{210}Pb e ^{210}Po .

Estima-se que entre indivíduos não fumantes destas áreas cerca de 70 a 80% do total de ^{210}Pb e ^{210}Po presentes no organismo são assimilados pela ingestão de alimentos sólidos⁽²⁴⁾.

2.3.1 Inalação

Conforme mencionado no item 2.2.2, o ^{210}Pb e o ^{210}Po acumulam-se no ar atmosférico como resultado de processos naturais e de atividades humanas. Os radionuclídeos são quase que exclusivamente transportados por partículas, das quais algumas são respiráveis e alcançam os pulmões.

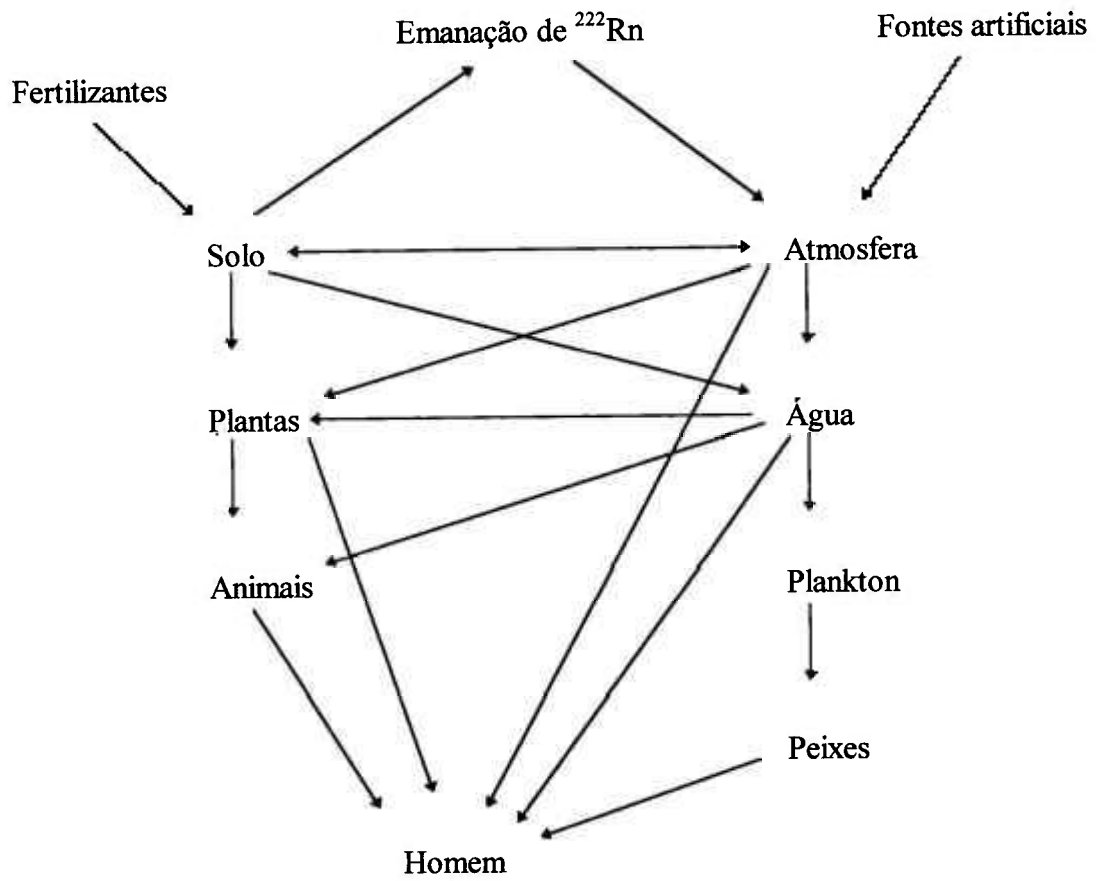


Figura 3 - Principais vias de assimilação de ^{210}Pb e ^{210}Pb pelo homem.

A assimilação por inalação depende das concentrações atmosféricas de ambos, as quais variam significativamente em localidades diferentes. Dados de assimilação por inalação são apresentados na tabela 7.

Diferentes efeitos biológicos ocorrem devido à inalação de ambos, as emissões de partículas alfa do ^{210}Po resultam principalmente em efeitos alveolares onde é depositado, ao passo que o ^{210}Pb é distribuído pelo corpo todo afetando-o de maneira mais homogênea antes de se acumular nos ossos.

2.3.2 Ingestão

A presença de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas potáveis decorre ou da precipitação atmosférica ou da migração destes presentes no solo vizinho à fonte. As concentrações de ambos em águas potáveis encontram-se na tabela 6.

Entre os não fumantes o consumo de alimentos é usualmente a via mais importante pela qual o organismo humano assimila ^{210}Pb e ^{210}Po . No Reino Unido 75% da dose decorrente de ambos advém da ingestão de pão, leite, cereais e carnes. A concentração de ^{210}Pb e ^{210}Po em vários alimentos é apresentada na tabela 8.

Para uma avaliação da dose de radiação decorrente da ingestão de alimentos, além dos níveis de concentração dos radionuclídeos são necessárias também as quantidades de cada alimento consumidas na dieta e a população envolvida. Como exemplo, tem-se os moluscos que apresentam altas concentrações de ^{210}Po mas somente uma pequena parte da população os consomem. A tabela 9 relaciona valores de ingestão diária de ^{210}Pb e ^{210}Po para vários países.

A razão para a elevada assimilação entre os habitantes do Ártico (índios e esquimós do Alasca) e da Finlândia é o consumo de grandes quantidades de carne de rena durante um

longo período do ano. As renas por sua vez consomem diariamente de 3 a 4 quilos de líquens. Outro exemplo de ingestão de quantidades elevadas de ^{210}Pb e ^{210}Po ocorre entre os indivíduos que ingerem alimentos de origem marinha, especialmente peixes e moluscos.

Em áreas que apresentam valores normais para a radiação de fundo, estima-se um valor de 111 mBq como média diária em decorrência da ingestão de ^{210}Pb e ^{210}Po presentes em alimentos⁽⁴⁷⁾.

Tabela 7 - Taxa de incorporação de ^{210}Pb e ^{210}Po por inalação⁽⁴⁷⁾

Radionuclídeo	Incorporação (mBq.d ⁻¹)
^{210}Pb	11 44*
^{210}Po	26 59*

* Fumantes : 20 cigarros diários

Tabela 8 - Concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po em vários alimentos⁽²⁴⁾

Alimento	Origem	^{210}Pb (mBq.kg ⁻¹)	^{210}Po (mBq.kg ⁻¹)
Leite	a	<22-167	
Ovo	b	47	110
Verduras+salada	a	555-31820	333-1628
Legumes e verduras	b	49	40
Batatas	a	80-224	33-189
Capim (úmido)	a	3367	8658
Capim + feno (seco)	a	7030-46250	1110-29600
Pão	b	61	27
Víceras	b	651	
Rins	b	1628	6605
Fígado	b	666	1230
Cação*	b	2500	2590
Rêmoras* Carpas* e Salmão*	b	740-2960	3330-4070
Peixe (brean)	c	240	430
Tubarão (cartilagem)	d		4400
Linguado (cartilagem)	d		78300
Linguado	b		1520
Cavalinha	b		1700
Bacalhau	b		1270
Caranguejo	b		1430-47000
Mexilhão	b		18500
Búzios	b		7600
Ostra	d		39470
Caranguejo	d		5200

* Provenientes de uma área com depósitos de minérios com alto teor de urânio

a) Alemanha

c) Rússia

b) Reino Unido

d) Índia

Tabela 9 - Valores de ingestão média diária de ^{210}Pb e $^{210}\text{Po}^{(24)}$

País	^{210}Pb (mBq.d ⁻¹)	^{210}Po (mBq.d ⁻¹)
Reino Unido	82	79
EUA (média)	46-52	60
Rússia	111-259	104-148
Alemanha	110-170	110-170
Japão	220	
Finlândia	318	2555
Alaska	370	3704
Bulgária		60-78
Argentina		48
Itália	110	110

2.3.3 Doses absorvidas

O ^{210}Pb e ^{210}Po juntamente com o intermediário ^{210}Bi por serem os últimos radionuclídeos da sub-série do ^{226}Ra estariam presentes no organismo humano mesmo na ausência de uma assimilação direta. Entretanto em condições normais o decaimento do ^{226}Ra , do ^{222}Rn e de seus descendentes com tempos de meias-vidas curtos presentes no organismo não desempenham um papel principal no acúmulo de ^{210}Pb e ^{210}Po no corpo humano. Somente em casos de exposição ocupacional, tal como a mineração de urânio, é que essas vias de incorporação são consideradas como importantes.

Os radionuclídeos ^{210}Pb e ^{210}Po apresentam comportamentos diferentes, o ^{210}Pb tal qual o chumbo estável apresenta a tendência de se acumular nos ossos, já o ^{210}Po , ao invés dos outros radionuclídeos naturais emissores alfa, acumula-se preferencialmente em tecidos moles, especialmente no fígado, baço e rins. O ^{210}Po presente nos ossos é decorrente do decaimento do ^{210}Pb .

Os níveis de ^{210}Pb e ^{210}Po nos vários tecidos e órgãos variam de indivíduo para indivíduo e conforme seus hábitos alimentares também. Entre os fumantes ocorre uma concentração adicional, um fator de 1,5 para o ^{210}Pb e 3,0 para o ^{210}Po em comparação com valores entre indivíduos não fumantes. A tabela 10 apresenta os níveis de concentração de ^{210}Pb e ^{210}Po em vários tecidos e órgãos do corpo humano.

A dose equivalente decorrente da sub-série do ^{210}Pb depende principalmente das partículas alfa do ^{210}Po . Quando em equilíbrio a porcentagem de contribuição para a dose absorvida como função das emissões de partículas beta do ^{210}Pb e ^{210}Bi é somente 3,7 da contribuição devida ao ^{210}Po ⁽⁴⁷⁾.

A dose equivalente para os indivíduos da Europa e América do Norte resultante do nível de concentração de ^{210}Po presente no corpo humano é de $140 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ para a medula óssea e tecidos moles. Valores de $850 \text{ mSv}\cdot\text{a}^{-1}$ foram encontrados para consumidores de carne de rena (habitantes do Ártico, Canadá e Alasca), para a mesma fonte⁽⁵⁾.

2.4 Propriedades do chumbo

O chumbo apresenta quatro isótopos estáveis naturais: ^{204}Pb (1,35-1,5%), ^{206}Pb (23,5-27%), ^{207}Pb (20,5-23%) e ^{208}Pb (51-53%). Com exceção do ^{204}Pb os demais são produtos finais das séries de decaimento radioativo, portanto a composição do chumbo varia de lugar a lugar e a sua massa atômica relativa não é constante.

O chumbo resiste à ação corrosiva dos ácidos hidrolórico concentrado, sulfúrico (13 M) e fluorídrico, porém o chumbo pode ser facilmente dissolvido em ácido nítrico diluído a quente.

O chumbo apresenta dois estados de oxidação: +2 e +4, dos quais o divalente +2 é o único estado de oxidação importante em soluções aquosas. Compostos de chumbo (+2) são iônicos enquanto que os formados pelo estado tetravalente são essencialmente covalentes. Nas tabelas 11 e 12 estão relacionados alguns dos sais solúveis e insolúveis de chumbo, respectivamente.

Existe um grande numero de radioisótopos de massa atômica variando entre 200-203, 205 e 209-214, quatro dos quais ocorrem entre os membros das séries naturais de decaimento (figura 1) são o ^{214}Pb ($t_{1/2}=26,8$ min ; $E_{\beta}= 1,03$ MeV) e o ^{210}Pb ($t_{1/2}=22,3$ a ; $E_{\beta}= 0,017$ MeV) na série do urânio, o ^{211}Pb ($t_{1/2}=36,1$ min ; $E_{\beta}= 1,36$ MeV) na série do actínio e o ^{212}Pb ($t_{1/2} = 10,64$ h ; $E_{\beta}= 0,28$ MeV) na série do tório⁽²⁷⁾.

Tabela 10 - Concentração de ^{210}Pb e ^{210}Po em tecidos e órgãos⁽²⁴⁾

Tecido / órgão	^{210}Pb (Bq.kg ⁻¹)	^{210}Po (Bq.kg ⁻¹)
Fígado	0,162-1,148 ^f	0,43-9,22 ^f
Rim	0,14-1,26 ^f	0,22-9,22 ^f
Osso	0,48-1,37 ^a	
	0,67-0,96 ^b	1,46 ^{b'}
		0,33 ^{b''}
	1,18-1,67 ^c	
	12,25 ^d	
	5,03-25,9 ^e	
	2,296-8,8 ^f	2,14-5,93
Pulmão	0,38-0,44 ^f	0,33-0,93 ^f
Tiróide	0,10-0,28 ^f	0,06-0,22 ^d
Sangue	0,03-0,10 ^d	0,009-0,067 ^d

a) Americanos b) Ingleses b') adultos b'') crianças

c) Alemães d) habitantes do Alasca e) Canadenses

f) habitantes do Ártico

Tabela 11 - Sais solúveis de chumbo⁽²⁷⁾

Nome	fórmula	solubilidade (g/100 ml)	temperatura °C
Acetato	$\text{Pb}(\text{C}_2\text{H}_3\text{O}_2)_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	45,61	15
Clorato	$\text{Pb}(\text{ClO}_3)_2$	151,3	18
Perclorato	$\text{Pb}(\text{ClO}_4)_2$	499,7	25
Nitrato	$\text{Pb}(\text{NO}_3)_2$	56,5	20

Tabela 12 - Sais insolúveis de chumbo⁽²⁷⁾

Nome	fórmula	solubilidade (g/100 ml)	temperatura °C
Carbonato	PbCO_3	0,00011	20
Cromato	PbCrO_4	$5,8 \cdot 10^{-6}$	20
Sulfato	PbSO_4	0,00425	25
Sulfeto	PbS	0,000086	

2.5 Propriedades do polônio

O polônio não apresenta isótopos estáveis. Os números de massa variam entre 193 e 218 existindo mais de 30, entre radioisótopos e isômeros, fato que impede um conhecimento detalhado de suas propriedades. A maioria decai por emissão de partícula alfa com energias variando entre 4,88 e 8,88 MeV, o ^{210}Po em particular emite partícula alfa com energia máxima de 5,304 MeV⁽⁴⁸⁾.

Vários isótopos resultam da desintegração de elementos radioativos das séries naturais de decaimento radioativo (figuras 1a, 1b e 1c).

Entre os isótopos naturais do polônio o que apresenta o maior tempo de meia-vida é o ^{210}Po ($t_{1/2} = 138,38 \text{ d}$)⁽⁴⁸⁾. O polônio pertence à família do oxigênio e analogamente ao telúrio apresenta estados de oxidação igual a -2, +2, +4 e +6, sendo o estado +4 mais estável.

O polônio é solúvel em ácido clorídrico e forma Po^{2+} , em meio nítrico e em água-régia produz o Po^{+4} . Em solução aquosa os íons do polônio são facilmente hidrolisados mesmo em meios ácidos (pH = 1).

Uma importante propriedade do polônio, empregada em sua análise é a deposição espontânea sobre superfícies de metais tais como a prata, níquel, cobre entre outros a partir de soluções ácidas. A deposição espontânea proporciona a separação do polônio dos demais radionuclídeos naturais.

O polônio é coprecipitado pela adição de sulfetos em soluções levemente ácidas na presença de carregadores como o cobre e o chumbo.

Em meio alcalino são empregados Fe^{3+} , La^{+3} , Bi^{+3} e Al^{+3} como carregadores. Hidróxido de sódio ou de amônio precipitam o polônio como hidróxido de polônio, no caso do Po^{+4} o provável precipitado tem a fórmula $\text{PoO}(\text{OH})_2$, a solubilidade do hidróxido de

polônio em água é cerca de $0,27 \text{ mg.L}^{-1}$, em hidróxido de amônio concentrado $0,90 \text{ mg.L}^{-1}$, em hidróxido de potássio a solubilidade aumenta com o aumento da concentração do álcali.

Polônio forma complexos com vários ânions, entre eles : oxalato, fosfato, acetato, tartarato, citrato, e o ânion correspondente do EDTA.

3 PARTE EXPERIMENTAL

3.1 Localização e características da área de estudo e das fontes analisadas^(47, 48)

A cidade de Águas da Prata esta localizada na porção Noroeste do Estado de São Paulo a uma altitude de 843 m próxima da divisa com o Estado de Minas Gerais. A temperatura média anual é de 23 °C.

Os índices pluviométricos anuais tem uma amplitude de 1.400 mm a 2.065 mm (figura 4). Estes índices foram fornecidos pelo Departamento de Águas e Energia Elétrica (DAEE/S.P.), a partir de duas estações pluviométricas:

- Posto 1 - Latitude 21° 57'' - Longitude 46°42'' - Altitude 940 m
- Posto 2 - Latitude 21° 50'' - Longitude 46°45'' - Altitude 1310 m

O tipo climático fundamental da área é o tropical, aparecendo também o subtropical, ambos com duas estações definidas, a das chuvas ocorrendo de outubro a março e das secas de abril a outubro. A região mostra um comportamento basicamente constante no aspecto higrométrico sendo úmida e quente no verão e seca no inverno.

A Estância de Águas da Prata situa-se na borda ocidental do Planalto de Poços de Caldas, região que é há muito conhecida por suas fontes de águas termais, medicinais e radioativas.

O planalto apresenta forma quase circular e caracteriza-se por ser um dos maiores complexos mundiais formados exclusivamente por rochas alcalinas, formando um maciço, que ocupa uma área da ordem de 800 km².

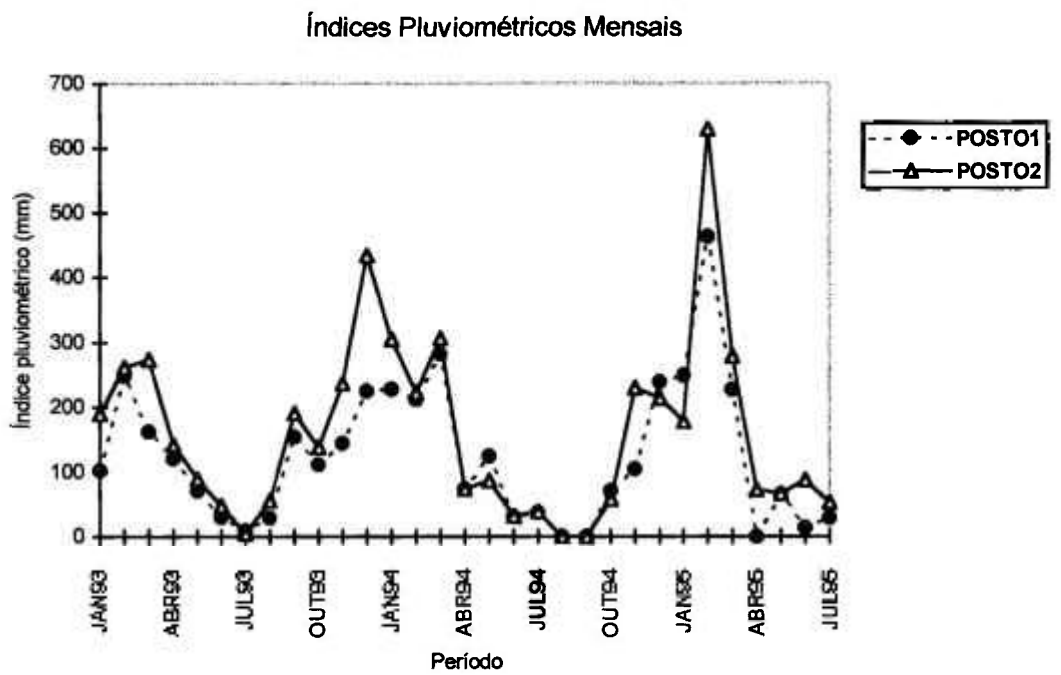


Figura 4 - Índices pluviométricos da região de Águas da Prata

Delimitando o maciço alcalino e fazendo parte dele, existe um anel de montanhas que constitui o dique anelar com um diâmetro variando entre 30 e 35 km, o qual lembra a borda de uma caldeira vulcânica, considerada a maior do mundo.

No complexo alcalino de Poços de Caldas as rochas mais abundantes pertencem ao clã nefelina-sienitos sendo constituído, principalmente por tinguaitos, fonolitos e foiaítos. São encontradas ainda no interior do maciço rochas anteriores à intrusão alcalina, que são sedimentos e rochas vulcânicas formados por tufos, brechas, aglomerados e lavas ankaratríticas. Pertencem a este conjunto de rochas ígneas e afloramento de rochas de origem vulcânica, brechas e tufos (rochas clásticas), geralmente associadas a arenitos, as principais fontes dos arredores da cidade de Águas da Prata.

É grande a disseminação dos elementos radioativos pela área do planalto, pois encontram-se associados principalmente às ocorrências de minério de zinco, de ferro e de manganês, além de outros.

Os minerais radioativos encontrados no planalto são: zircão, badelleyta, monazita, apatita, eudalita, entre outros. Não está confirmada a presença de minerais radioativos primários de urânio e tório. Tal disseminação é a responsável pela origem da radioatividade presente nas águas das fontes.

A cidade de Águas da Prata é circundada pelo dique anelar de tinguaito a oeste e pela escarpa de rochas clásticas a leste.

Segundo Frayha⁽⁴⁹⁾, as ocorrências uraníferas no arenito de Águas da Prata devem-se a um material amarelo muito argiloso, uma espécie de ocre de ferro, produto secundário típico de preenchimento de fendas, contendo em geral de 0,1 a 0,2 % de óxido de urânio (U_3O_8). Esse urânio provém do minério zircono-uranífero existente no local, ligado com os nefelina sienitos encontrados na região do Planalto. Conforme análises efetuadas, a radioatividade é diretamente proporcional ao teor de ZrO_2 .

Foram estudadas onze fontes pertencentes ao município de Águas da Prata, são elas: Prata Antiga (P. Antiga), Prata Radioativa (P. Rad.), Prata Nova (P. Nova), Paiol, Villela,

Platina, Vitória, Balneário, São Bento (S. Bento), Villela Gruta (V. Gruta) e Padre. As fontes pertencem ao conjunto de rochas ígneas e clásticas existentes. Com exceção da fonte Platina, a qual encontra-se inacessível ao público, em todas as outras o acesso do público é permitido.

As fontes que surgem de diabásios e rochas vulcânicas, entre elas Prata Antiga, Paiol, Prata Nova, Vitória, Platina, Balneário e Padre, encontram-se nas baixadas ou nos vales, sendo portanto fontes de fissuras, onde a água tem movimento ascendente pelas fissuras e a alimentação ocorre nas partes mais elevadas. Por outro lado, as fontes surgentes de arenitos, Prata Radioativa, Villela, São Bento e Villela Gruta encontram-se todas em locais elevados, onde a água surge através de falhas e fraturas no arenito ou no contato de arenito com o solo, e a alimentação do aquífero ocorre a grandes distâncias.

3.2 Considerações gerais sobre o método analítico para determinação de ^{210}Pb e ^{210}Po

Procurou-se na literatura ⁽⁵⁰⁻⁶³⁾ um método radioquímico no qual poucos processos de separação fossem empregados de modo a evitar gastos e diminuir os erros analíticos e que ao mesmo tempo fornecesse informações específicas sobre os radionuclídeos⁽⁷⁾.

Na análise de amostras ambientais onde os valores de radioatividade são normalmente baixos, é necessário que as amostras sejam primeiramente pré-concentradas. Neste trabalho esta etapa é realizada pela redução de volume da amostra. Frente a outros métodos de pré-concentração tais como a extração por solventes e troca iônica a evaporação apresenta a vantagem de ser prática e pouco onerosa.

O método empregado baseia-se na separação radioquímica do ^{210}Pb e do ^{210}Po por coprecipitação com sulfeto de chumbo com posterior conversão em sulfatos⁽⁵²⁾.

A medida direta do ^{210}Pb em amostras ambientais não é usualmente realizada por causa da baixa intensidade de sua radiação ($E_{\beta}= 18 \text{ keV}$; $E_{\gamma}= 47 \text{ keV}$). Entretanto, determinações indiretas podem ser feitas pela medida da atividade de seus descendentes: ^{210}Bi e ^{210}Po . Assim o ^{210}Pb é coprecipitado como cromato de chumbo e sua atividade é determinada pela contagem da atividade do ^{210}Bi após um tempo pré-determinado para o crescimento deste.

O ^{210}Bi apresenta um tempo de meia-vida curto, apenas cinco dias, e emite partículas beta de maior energia ($E_{\beta}= 1,17 \text{ MeV}$), as quais podem ser facilmente detectadas em um contador proporcional de fluxo gasoso. A vantagem do método de contagem do ^{210}Bi está no curto tempo necessário para atingir o equilíbrio radioativo parcial entre o precursor ^{210}Pb e o descendente ^{210}Bi . Após 15 dias de crescimento cerca de 87% do equilíbrio na sub-série $^{210}\text{Pb} - ^{210}\text{Bi}$ é alcançado e 97% em 25 dias⁽⁶⁵⁾.

O principal método de análise encontrado para a determinação do polônio é o que emprega a separação deste por deposição sobre superfícies metálicas tais como a prata, o níquel, o ouro, a platina e o cobre. A deposição ocorre espontaneamente a partir de soluções ácidas onde o polônio é depositado preferencialmente, o que evita a interferência de outros elementos ou radionuclídeos presentes na solução. Outra vantagem é que a deposição espontânea proporciona um depósito homogêneo de camada fina e a própria superfície metálica é empregada como suporte.

A determinação da atividade do ^{210}Po é realizada por espectrometria alfa, técnica que consiste na determinação da intensidade e energia das partículas alfa por meio de um processo de interação dessas partículas com o detector.

Os rendimentos químicos são determinados por métodos diferentes, o rendimento químico do ^{210}Pb é determinado gravimetricamente pela adição de carregador (chumbo estável) e do ^{210}Po pela adição de traçador interno (^{208}Po).

O controle de qualidade do procedimento radioquímico foi realizado pela análise de amostra de intercomparação (Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes - LNMRI / Instituto de Radioproteção e Dosimetria - IRD).

3.3 Materiais e equipamentos

Balança analítica E. Mettler modelos M5 SA e AE 50

Bomba de vácuo Químis

pHmetro Procyon modelo pH-210

Termômetro a vácuo -10 °C a 110 °C

Centrifuga Fanem modelo Excelsa 204NR

Chapa aquecedora Ética

Agitadores magnéticos com aquecimento Químis

Vidrarias Pyrex

Chapa de cobre 0,56 mm de espessura

Frascos (1000 ml) e galões (10000 ml) de polietileno

Estufa Fanem modelo 315 SE

Papeis de filtro: Whatman nº 1

Framex 389¹

Millipore em microfibra de vidro e tipo membrana

Pipetas Automáticas: Kacil $0,97 \pm 0,01$ ml C.V. 0,1 %

Finnpipette $0,998 \pm 0,004$ ml C.V. 0,4 %

$1,008 \pm 0,002$ ml C.V. 0,2%

Detector proporcional de fluxo gasoso Berthold modelo LB 770-2

Espectrômetro alfa com detector barreira de superfície com 300 mm² de área ativa e espessura ativa de 100 microns

Analisador multicanal Camberra modelo 35 plus

Fonte de ²⁴¹Am com atividade nominal de 5,55 kBq de procedência Amersham (Reino Unido)

Fonte tríplice de ²³⁹Pu, ²⁴¹Am e ²⁴⁴Cm com atividade nominal de 5,55 kBq de procedência Amersham (Reino Unido)

3.3.1 Reagentes

Todas as soluções utilizadas foram devidamente preparadas com água destilada. Todos os reagentes empregados foram de grau analítico. Padrões de ^{208}Po foram fornecidos pelo Laboratório Nacional de Metrologia das Radiações Ionizantes - LNMRI - IRD

Atividade: $40,11 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$

massa: 1,078537 g

data de referência: 07.05.93

Atividade: $34,114 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$

massa: 1,155236 g

data de referencia: 22.04.94

Padrão de ^{210}Pb fornecido pelo LNMRI - IRD

Atividade: $83,694 \text{ Bq} \cdot \text{g}^{-1}$

data de referência: 09.03.92

Soluções:

HCl 3M

Na_2CrO_4 30%

HNO_3 concentrado

Na_2S 1M

NaOH 20 M

NaCH_3COO

3.4 Metodologia

As amostras de água são coletadas diretamente das fontes em recipientes de polietileno de 10 L de volume, previamente lavados, onde 200 mL de HNO_3 6 M são adicionados afim de garantir um $\text{pH} \leq 1$ e assim evitar perdas por adsorção. Os recipientes são preenchidos por completo, tampados e rotulados com o nome da respectiva fonte coletada.

Em um bequer a parte são determinados a temperatura e o pH da água de cada fonte coletada, sendo os dados devidamente registrados.

As análises foram, sempre que possível, realizadas em duplicata.

Partindo de um volume inicial de 5 L , concentra-se cada amostra em bequeres até um volume final de 300 a 400 mL procurando-se não atingir temperaturas superiores a 80 °C, evitando assim perdas por ebulição, pois o polônio é um elemento volátil.

Uma vez concentradas as amostras mede-se o pH (tira indicadora), que deve estar próximo a 1 e transfere-se para frascos menores de polietileno, para armazenamento temporário.

O passo seguinte é o da neutralização da solução com uma solução de NaOH 20 M. Esta dá-se sob agitação (agitador magnético) , sendo o ponto de viragem reconhecido pela mudança de cor da solução, que passa de incolor a amarela clara e chegando a amarelo canário, devido à formação de $\text{Fe}(\text{OH})_3$.

Nesta solução adicionam-se um volume de 1,0 mL de solução padrão de chumbo estável ($20 \text{ mg} \cdot \text{mL}^{-1}$) e 2,0 mL de solução de traçador de ^{208}Po .

O pH da solução final deve ser levemente ácido, entre 5 e 6, sendo verificado com tira indicadora de pH.

Ainda sob agitação, adicionam-se 2,0 mL de solução de Na_2S 1 M , deixando a solução em repouso por 4 a 6 horas. O precipitado é formado na sua maioria por sulfeto de chumbo (devido à presença do carregador) no qual o sulfeto de polônio está coprecipitado.

A solução é então filtrada a vácuo em papel de filtro do tipo membrana (0,8 μm de diâmetro de poro) num sistema Millipore de filtração.

O precipitado e o papel de filtro são transferidos para um bequer de menor volume (50 mL), onde o sulfeto de chumbo é oxidado a sulfato pela adição de 10,0 mL de HNO_3 concentrado com aquecimento.

O precipitado (sulfato de chumbo e polônio) é seco lentamente em banho de areia, para evitar super aquecimento e conseqüentemente perdas por volatilização do polônio e eliminando parte da acidez.

Após a secura, o precipitado é dissolvido sob agitação e aquecimento em 0,5 mL de HNO_3 conc. e aproximadamente 40 mL de H_2O .

Em seguida a solução é centrifugada durante 15 minutos a 2500 rpm.

Na solução sobrenadante se encontra a maior parte do polônio dissolvido e no precipitado a maior parte do chumbo, na forma de PbSO_4 .

O sobrenadante é empregado para a determinação do polônio, sendo então transferido para uma cela de deposição. O precipitado de sulfato de chumbo é transferido para um bequer, para posterior determinação do chumbo.

A cela de deposição (figura 5) é um frasco de polietileno com 70 mL de capacidade, onde na tampa é adaptado um disco de cobre sobre o qual ocorre o fenômeno da deposição espontânea.

Os discos de cobre são, antes da deposição, quimicamente limpos, empregando-se HCl conc. e desengordurados com álcool etílico.

A deposição dá-se durante 8 horas sob agitação contínua. O volume da solução de deposição é de aproximadamente 40 - 50 mL e o pH deve ser mantido menor ou igual a 1, ambos isótopos são depositados sobre a superfície do disco de cobre com uma área de deposição de 95 mm^2 .

Após a deposição, transfere-se a solução para o bequer que contém o precipitado da centrifugação. Em seguida retira-se o disco de cobre. O disco é lavado com água destilada e seco ao ar.

A medida da atividade é realizada durante um intervalo de tempo de 50400 segundos em um espectrômetro alfa com detector de barreira de superfície acoplado a um analisador multicanal. O rendimento químico do ^{210}Po é determinado pela atividade obtida para o traçador interno (^{208}Po).

A solução empregada no processo de deposição do polônio e o precipitado da centrifugação agora contidos num mesmo bequer possibilitam a subsequente determinação do chumbo.

Completa-se o volume desta solução para aproximadamente 300 mL com água e sob aquecimento e agitação adicionam-se 4,0 mL de solução saturada de acetato de amônio, procurando assim uma maior dissolução do sulfato de chumbo. Filtra-se, então, com papel de filtro quantitativo, mede-se o pH que deve ser de 4 a 5 e ainda a quente e sob agitação adiciona-se 1,0 mL de cromato de potássio (30 %), lentamente.

Obtém-se desta forma o precipitado amarelo de PbCrO_4 . Deixa-se em repouso até que esfrie, filtra-se empregando papel de filtro em microfibra de vidro num sistema Millipore de filtragem.

O precipitado de cromato de chumbo é seco em estufa, a 110°C , até obter-se massa constante.

O precipitado é então armazenado em dessecador até o momento da medida, a massa obtida é utilizada para se calcular o rendimento químico da determinação do chumbo.

A medida é realizada após um período de 25 dias da data da precipitação do PbSO_4 , tempo este necessário para que se atinja o equilíbrio parcial entre o ^{210}Pb e o ^{210}Bi (aproximadamente 5 meias - vidas do ^{210}Bi). Para se evitar a contagem alfa e beta

provenientes do ^{210}Po e do ^{210}Pb , respectivamente, recobre-se o precipitado com uma folha de papel de filtro qualitativo (87 g.m^{-2} de gramatura).

As amostras são medidas em um detector proporcional de fluxo gasoso modelo Berthold, durante um intervalo de tempo de 300 minutos por 3 vezes. A figura 6 apresenta um diagrama geral do procedimento radioquímico empregado.

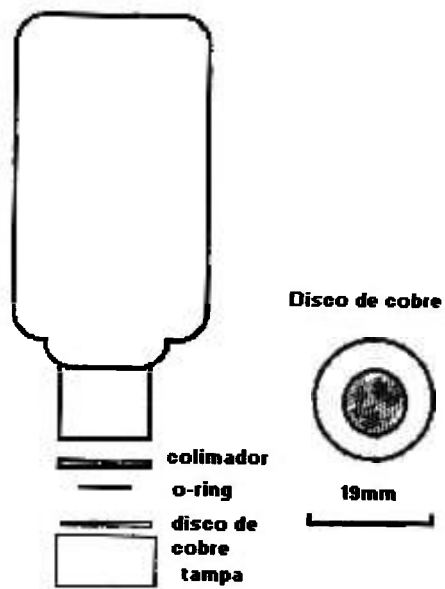


Figura 5 - Cella de deposição

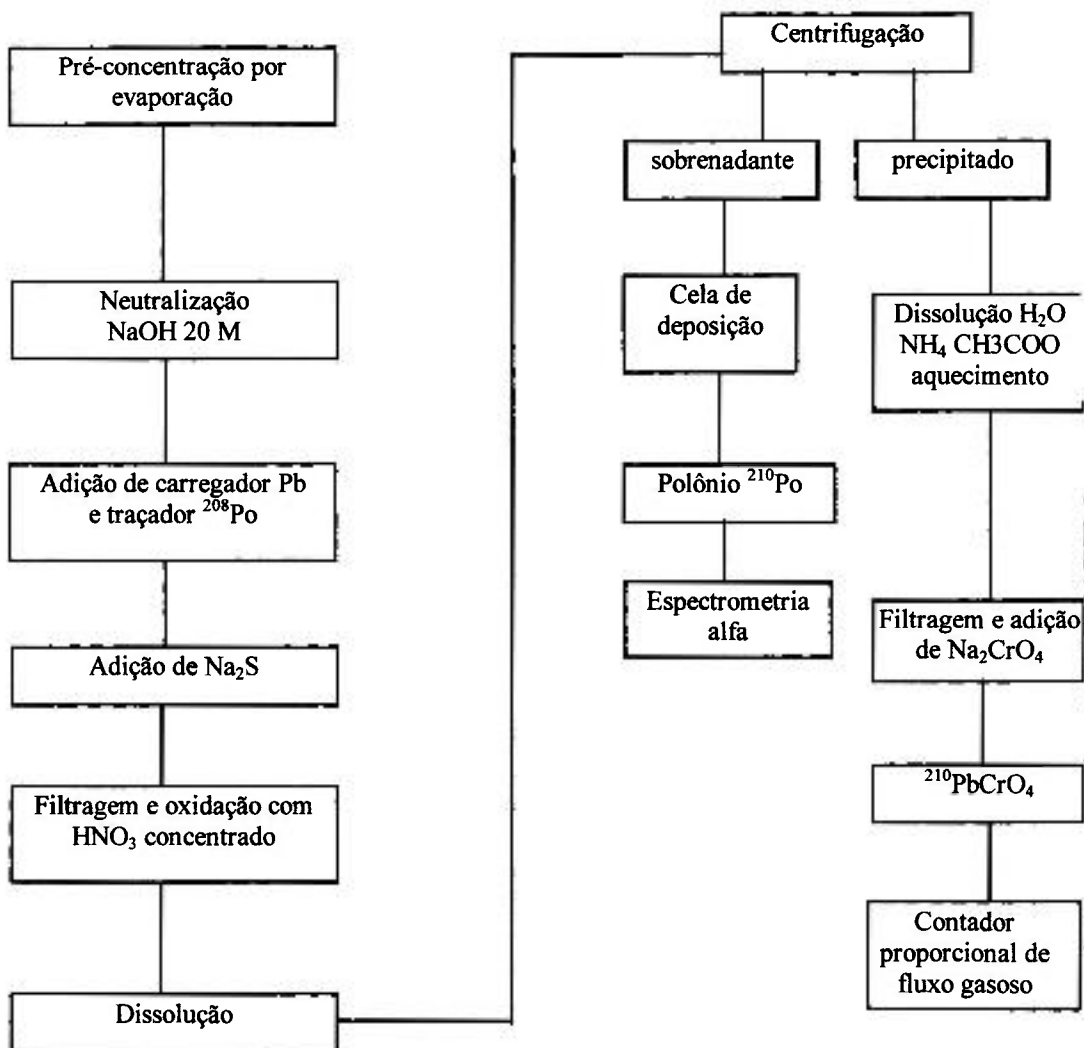


Figura 6 - Diagrama generalizado do procedimento radioquímico de separação e determinação de ^{210}Pb e ^{210}Po .

3.5 Definição de parâmetros para a determinação do ^{210}Pb

A determinação das concentrações de ^{210}Pb nas amostras provenientes das fontes de águas minerais foi realizada empregando-se a metodologia descrita no item 3.4. Entretanto, foi necessário para a implementação do método proposto, estabelecer alguns parâmetros experimentais, tais como precisão e exatidão, eficiência de contagem do detector, valor da radiação de fundo do detector, branco do processo e limite inferior de detecção do sistema de contagem.

3.5.1 Estudo da reprodutibilidade e exatidão do método

A reprodutibilidade do método, isto é, a sua precisão assim como a exatidão, são parâmetros determinados pela análise de uma amostra de intercomparação, fornecida pelo IRD como parte do Programa Nacional de Intercomparação. A amostra de intercomparação foi submetida ao procedimento radioquímico descrito no item 3.4.

Foram realizadas seis análises das quais apenas três foram consideradas válidas como resultado final. Os resultados obtidos são apresentados na tabela 13.

A precisão é numericamente expressa pelo valor do desvio padrão relativo expresso em termos de percentagem, isto é, sob a forma de coeficiente de variação (C.V.). A precisão obtida apresentou um valor de 7%.

Verifica-se que a exatidão da metodologia proposta foi de 23 %. Valor expresso sob a forma de percentagem de erro relativo.

Tabela 13 - Resultado da análise da amostra de intercomparação

Elemento	x_i	X	s	U	S_u	D	CV	NA	LC
^{210}Pb	68,07								
	77,92	73,51	5,00	59,9	12,0	1,96	7%	dentro	dentro
	74,53								

x_i - valores das análises (pCi) D - desvio normalizado
 X - valor médio (pCi) CV - coeficiente de variação
 s - desvio padrão de X NA - níveis de advertência
 U - valor de referência (pCi) LC - limites de controle
 s_U - desvio padrão de U

3.5.2 Determinação da eficiência de contagem

A eficiência de contagem do detector utilizado foi determinada pela análise de amostras simuladas, empregando-se água destilada contendo 20,0 mg de chumbo estável e 2,0 mL de solução padrão de ^{210}Pb . As amostras foram submetidas ao procedimento radioquímico descrito no item 3.4. A adição do traçador interno de ^{208}Po foi omitida.

A eficiência é dada pela seguinte fórmula:

$$E_f = \frac{C_a - C_{bp}}{A_p \cdot \eta \cdot 60}$$

Onde :

- E_f = eficiência de detecção (cps.dps⁻¹)
- C_a = contagem da amostra (cpm)
- C_{bp} = contagem do branco do processo (cpm)
- A_p = atividade do padrão adicionado (dps)
- η = rendimento químico
- 60 = fator de conversão

Os resultados obtidos encontram-se na tabela 14. O valor médio para a eficiência é igual a $0,37 \pm 0,02$ cps.dps⁻¹.

Tabela 14 - Eficiência de contagem

Detector	Ef (cps.dps ⁻¹)
1	0,304
2	0,362
3	0,357
4	0,360
5	0,356
6	0,364
7	0,374
8	0,375
9	0,382
10	0,365

3.5.3 Determinação da radiação de fundo do detector

A determinação do valor da radiação de fundo (R_f) do detector foi realizada na ausência de qualquer amostra ou mesmo suporte para amostras, estando presente somente a bandeja a qual é parte do aparelho. Para a medida foi empregado o mesmo intervalo de tempo de contagem que foi utilizado nas amostras.

A tabela 15 apresenta os valores das contagens da radiação de fundo do aparelho. O valor médio para a radiação de fundo do aparelho é $0,7 \pm 0,2$ cpm.

3.5.4 Determinação do branco do processo

Para a determinação do branco do processo, amostras com um volume inicial de cinco litros preparadas com água destilada foram submetidas à metodologia descrita no item 3.4. A adição do traçador interno de ^{208}Po foi omitida.

Ao adotar este procedimento permitiu-se que os resultados obtidos fossem também empregados na determinação de outros parâmetros: limite inferior de detecção das análises do ^{210}Pb (item 3.5.5) e do ^{210}Po (item 3.6.6) e o branco do processo da análise do ^{210}Po (item 3.6.5).

O objetivo da determinação do branco do processo é a verificação do efeito das impurezas introduzidas pelos reagentes utilizados. Os valores encontram-se na tabela 16. O valor médio obtido para o branco do processo é $2,8 \pm 0,2$ cpm.

Tabela 15 - Contagem da Radiação de fundo
do aparelho (Rf)

Detector	Rf (cpm)
1	0,850
2	0,557
3	0,613
4	0,446
5	0,725
6	0,808
7	0,697
8	0,836
9	0,753
10	0,976

Tabela 16 - Contagem para o branco do processo (bp)

Detector	bp (cpm)
1	2,961
2	2,424
3	2,660
4	2,546
5	2,839
6	3,142
7	2,666
8	2,907
9	2,606
10	2,834

3.5.5 Determinação do limite inferior de detecção

O Limite Inferior de Detecção (LID) é definido como a menor concentração de material radioativo amostrado que possui uma probabilidade de 95% de ser detectado, com uma probabilidade de somente 5% de se obter uma resposta interpretada como radioatividade quando na realidade ela não existe. O cálculo do Limite Inferior de Detecção é dado pela seguinte equação⁽⁶⁶⁾:

$$LID = \frac{4,66 \cdot s_b}{T \cdot Ef \cdot V \cdot \eta} \cdot 10^3$$

Onde: LID = Limite Inferior de Detecção (mBq . L⁻¹)

s_b = desvio padrão da taxa de contagem do branco do processo -bp

T = tempo total de contagem (s)

Ef = eficiência de detecção (cps . dps⁻¹)

V = volume de amostra (L)

η = rendimento químico

O valor 4,66 corresponde a um risco pré-determinado de que existe um certo nível de atividade na amostra, quando na realidade não existe e de que não existe atividade presente na amostra quando na realidade existe, considerando-se um nível de confiança de 95%.

Para a determinação do limite inferior de detecção os valores do desvio padrão da taxa

de contagem do branco do processo (s_b) e do rendimento químico (η) empregados na equação acima provém do procedimento anterior (item 3.5.4). O valor da eficiência (Ef) provém da determinação da eficiência de contagem (item 3.5.2). Os demais valores empregados, tempo de contagem e volume da amostra, estão em conformidade com a metodologia aplicada às amostras (item 3.4). Os valores para o limite inferior de detecção encontram-se na tabela 17. O valor médio para o LID é igual a 3,5 mBq.L⁻¹.

Tabela 17 - Valores do Limite Inferior de Detecção (LID)

Detector	LID(mBq.L ⁻¹)
1	3,8
2	3,8
3	3,7
4	3,6
5	3,6
6	3,0
7	3,5
8	3,3
9	3,5
10	3,3

3.6 Definição de parâmetros para a determinação do ^{210}Po

A determinação das concentrações de ^{210}Po nas amostras provenientes das fontes de águas minerais foi realizada empregando-se a metodologia descrita no item 3.4. Entretanto, foi necessário para a implementação do método proposto, estabelecer alguns parâmetros experimentais, tais como eficiência de contagem do detector, levantamento da curva de calibração energia x canal para o detector, valor da radiação de fundo do detector, branco do processo e limite inferior de detecção do processo.

3.6.1 Estudo da reprodutibilidade e exatidão do método

A determinação da precisão e exatidão do método para a análise do ^{210}Po depende da disponibilidade de uma amostra padrão de intercomparação.

Como não foi possível a obtenção de tal amostra padrão contendo ^{210}Po solúvel em água, este estudo foi realizado preparando-se cinco amostras a partir de um padrão de ^{210}Pb , fornecido pelo I.R.D. As amostras foram submetidas a metodologia descrita no item 3.4.

O padrão apresentava entre a data de referência e a data de uso 9,94 meias-vidas do ^{210}Po . Este tempo é suficiente para atingir o equilíbrio radioativo.

Os resultados obtidos encontram-se na tabela 18. A precisão da metodologia proposta, obtida a partir do coeficiente de variação foi de 2,5%. A exatidão do método, expressa pelo valor médio do erro percentual relativo, foi de 39%.

Tabela 18 - Resultado da análise da amostra com padrão de ^{210}Pb

Amostra	Atividade (Bq) de ^{210}Pb adicionado	Rendimento químico	Atividade (Bq) de ^{210}Po encontrado
1	0,5805	0,20	0,3511
2	0,5805	1,15	0,3681
3	0,5805	1,04	0,3460
4	0,5805	0,93	0,3440
5	0,5805	1,24	0,3601

valor médio	0,354 Bq
desvio padrão	0,009
coeficiente de variação	2,5%
erro percentual relativo	39%

3.6.2 Determinação da curva de calibração energia em função do canal

A curva de calibração de energia em função do canal tem por objetivo determinar as energias das partículas emitidas pelos radioisótopos em análise. Os isótopos do polônio (^{208}Po e ^{210}Po) emitem partículas com energias 5, 1152 e 5,30438 MeV, respectivamente.

A curva de calibração “energia x canal” foi obtida por meio de uma fonte tríplice calibrada constituída por ^{239}Pu (5,1566 MeV), ^{241}Am (5,4856 MeV) e ^{244}Cm (5,8048 MeV) com uma atividade nominal de 5,55 kBq, fornecida pela Amersham.

A medida foi realizada durante 100 segundos e empregando-se as mesmas condições de contagem, isto é, suporte, distância fonte-detector (1 mm) e pressão interna ($<10^{-3}$ torr). Aplicando-se o método dos mínimos quadrados, obtém-se assim a equação da reta para a curva de calibração:

$$E = 2,9298 + 0,00447.\text{canal}$$

onde :

E = energia da partícula (MeV)

canal = número do canal onde estão registradas as contagens

3.6.3 Determinação da eficiência de contagem

A eficiência de detecção é determinada pela medida da atividade de uma fonte calibrada. A fonte empregada é de ^{241}Am com atividade nominal igual a 5,55 kBq (150 ηCi) e procedência Amersham (Reino Unido).

A eficiência é dada por:

$$E_f = \frac{C_a}{A_p}$$

Onde: E_f = eficiência de detecção (cps . dps⁻¹)

C_a = contagem da amostra (cps)

A_p = atividade nominal da fonte (dps)

A atividade da amostra foi determinada por cinco contagens de 100 segundos cada. O valor obtido para a eficiência de contagem do detector é igual a $0,294 \pm 0,001$ cps.dps⁻¹.

3.6.4 Determinação da radiação de fundo do detector

A radiação de fundo do aparelho foi periodicamente determinada, esta realizada procurando-se repetir as mesmas condições de contagem empregadas com as amostras, mantendo-se no interior da câmara de contagem o suporte para amostras, a distância suporte-detector e vácuo.

O aparelho apresentou durante o primeiro ano de desenvolvimento do trabalho experimental um valor correspondente a 18.10^{-2} cpm na região de interesse entre os canais 400 e 600, para contagens de até 341.10^3 segundos. No segundo ano foi encontrado um valor igual a 5.10^{-3} cpm para a mesma região, para contagens de até 260.10^3 segundos.

3.6.5 Determinação do branco do processo

Para a determinação do branco do processo do procedimento radioquímico para análise do ^{210}Po foram utilizadas amostras previamente preparadas em conformidade com a metodologia descrita no item 3.4. As amostras foram submetidas a esta metodologia. A adição de traçador interno de ^{208}Po foi omitida.

O valor médio obtido para o branco do processo é $0,02 \pm 0,01$ cpm.

3.6.6 Determinação do limite inferior de detecção

Para determinar o limite inferior de detecção do procedimento radioquímico para análise do ^{210}Po foram utilizadas amostras previamente preparadas (item 3.5.4). As amostras foram submetidas à metodologia descrita no item 3.4. A adição do traçador interno de ^{208}Po foi omitida. O valor do limite inferior de detecção da análise de ^{210}Po é obtido de forma análoga ao descrito no item 3.5.4.

Para a determinação do limite inferior de detecção, o valor do desvio padrão do branco do processo (sb) provém da determinação do parâmetro anterior (item 3.6.5). Foi considerado aqui um rendimento químico teórico igual a 1, uma vez que a adição do traçador interno de ^{208}Po foi omitida. O valor da eficiência (Ef) provém da determinação do parâmetro eficiência de contagem (item 3.6.3). Os demais valores empregados, tempo de contagem e volume inicial da amostra estão em conformidade com a metodologia aplicada (item 3.4).

O valor obtido para o limite inferior de detecção nesta análise é $0,34 \text{ mBq.L}^{-1}$.

4 RESULTADOS

As amostras foram coletadas em cada estação do ano ao longo do período compreendido entre setembro de 1993 e novembro de 1994. Em cada uma das fontes coletaram-se 10 litros de água. Mediram-se durante a coleta os valores de pH e temperatura das águas de cada fonte, estes resultados são apresentados na tabela 21. As amostras foram devidamente acondicionadas em recipientes de polietileno sendo assim transportadas para o laboratório onde permaneceram à temperatura ambiente até o momento da análise.

4.1 Determinação da concentração de ^{210}Pb

A concentração de ^{210}Pb é determinada pela equação seguinte:

$$C^{210}\text{Pb} = \frac{Ca - Cbp}{\eta \cdot Ef \cdot V \cdot 60} \cdot 10^3$$

Onde :

- $C^{210}\text{Pb}$ = concentração de ^{210}Pb (mBq . L⁻¹)
- Ca = contagem para amostra (cpm)
- Cbp = contagem do branco do processo (cpm)
- η = rendimento químico
- Ef = eficiência de detecção (cps . dps⁻¹)
- V = volume da amostra (L)
- 60 = fator de conversão

Os valores das concentrações de ^{210}Pb , determinadas nas amostras coletadas, são apresentadas na tabela 19. As variações de rendimento químico obtidas nas determinações também são apresentadas.

Tabela 19 - Concentrações de ^{210}Pb (mBq . L⁻¹)

Coleta	20/09/93	10/01/94	28/04/94	12/08/94	18/11/94	variação de rendimento
Fonte						
Padre	< LID	6 ^b	5,9±0,2	14 ^b	< LID	0,40-0,95
PaioI	a	< LID	5 ^b	10±1	9±1	0,53-1,00
Balneário	a	a	24±4	18±8	14±1	0,67-0,80
Vitória	28 ^b	25±7	29±5	16±5	10,1 ^b	0,47-1,00
P. Antiga	9 ^b	21±8	31±3	26,4 ^b	27±2	0,47-0,99
Platina	23 ^b	27 ^b	46±3	64±2	73±1	0,25-0,96
P. Rad.	42 ^b	59 ^b	39±4	44±4	34±4	0,27-0,95
P. Nova	44 ^b	50±9	42±1	42±2	48±26	0,31-1,00
Vilela	235±94	210±3	373±60	415±66	486±20	0,40-0,98
S. Bento	515±30	497±86	574±69	608±64	780±99	0,35-0,95
V. Gruta	1072±31	1378±766	716±27	714±39	797±14	0,79-0,99

a) amostras descartadas

b) amostra única

4.2 Determinação da concentração de ^{210}Po

A concentração de ^{210}Po é dada por :

$$C^{210}\text{Po} = \frac{Ca - Cbp}{T.Ef.\eta.V} . 10^3$$

Onde : $C^{210}\text{Po}$ = concentração para ^{210}Po ($\text{mBq} \cdot \text{L}^{-1}$)

Ca = contagem da amostra no intervalo de interesse

Cbp = contagem do branco do processo

T = tempo de contagem (s)

Ef = eficiência de detecção ($\text{cps} \cdot \text{dps}^{-1}$)

η = rendimento químico

V = volume da solução (L)

Os valores das concentrações de ^{210}Po , determinadas nas amostras coletadas, são apresentadas nas tabelas 20, as variações de rendimento químico obtidas nas determinações também são apresentadas.

Tabela 20 - Concentrações de ^{210}Po (mBq . L⁻¹)

Coleta	20/09/93	10/01/94	28/04/94	12/08/94	18/11/94	variação de rendimento
Fonte						
Padre	^a	3 ^b	3,1±0,3	3,7±0,7	6 ^b	0,20-0,54
Paíol	^a	11±5	9,3±0,1	8,8±0,1	9,0±0,5	0,37-0,57
Balneário	^a	^a	9,4±0,4	13,2±0,6	14±1	0,47-0,59
Vitória	^a	^a	15±2	9,75±0,02	11,3 ^b	0,53-0,58
P. Antiga	23,0±0,4	11±1	21,73±0,04	15,4 ^b	18±5	0,44-0,71
P. Nova	35±2	36±8	33±3	26,5±0,9	21±1	0,31-0,72
Platina	^a	23 ^b	40±2	49 ^b	53±2	0,20-0,73
P. Rad.	41,0 ^b	92±27	33±2	32±3	26±5	0,26-0,55
Vilela	155±26	120±22	209±31	196±31	234±13	0,13-0,78
S. Bento	317±169	356±31	278±66	340±69	398±39	0,45-0,71
V. Gruta	^a	494±57	332±27	362±15	363±1	0,64-0,72

a) amostras descartadas

b) amostra única

Tabela 21 - Variação dos valores de pH e temperatura

Fonte	pH	temperatura °C
Padre	6,9-7,5	20-22
Paíol	7,0-7,4	21-22
Balneário	6,7-7,8	22-24
Vitória	7,8-8,2	22-24
P. Antiga	7,6-8,0	19-22
P. Nova	6,9-7,1	22-26
Platina	8,2-8,5	23-25
P. Rad.	6,9-7,2	20-24
Vilela	4,7-5,4	21-22
S. Bento	4,7-5,0	20-21
V. Gruta	4,7-5,0	20-22

4.3 Cálculo de dose

Para se avaliar o impacto devido à ingestão dos radionuclídeos ^{210}Pb e ^{210}Po presentes nas águas estudadas foi determinada a dose equivalente efetiva para o corpo inteiro e a dose equivalente nos órgãos críticos.

A dose equivalente efetiva é a soma dos produtos da dose equivalente nos tecidos e órgãos pelos respectivos fatores de ponderação. O fator de ponderação de um tecido ou órgão é um fator que considera as diferentes sensibilidades de tecidos e órgãos à irradiação.

Os valores de dose equivalente devida à ingestão de ^{210}Pb e ^{210}Po presentes nas águas estudadas são obtidos por meio da expressão seguinte:

$$H_{ij} = C_i \cdot 438 \cdot \text{FCD}_{ij}$$

onde: H_{ij} = dose anual resultante da ingestão do radionuclídeo i no órgão j ou corpo inteiro ($\text{mSv}\cdot\text{a}^{-1}$)

C_i = concentração do radionuclídeo i ($\text{mBq}\cdot\text{L}^{-1}$)

438 = valor correspondente ao consumo anual considerando-se uma ingestão diária de 1,2 litros ($\text{L}\cdot\text{a}^{-1}$)

FCD_{ij} = fator de conversão de dose para ingestão do radionuclídeo i para o órgão j ou para o corpo inteiro ($\text{Sv}\cdot\text{Bq}^{-1}$)

Os valores de dose equivalente foram determinados para os cinco órgãos mais críticos para cada radionuclídeo.

4.3.1 Determinação da dose equivalente para o ^{210}Pb

Os cinco órgãos mais críticos e seus correspondente fatores de conversão de dose (Sv.Bq^{-1}) para o ^{210}Pb são⁽⁶⁷⁾:

Osso (superfície):	$2,3 \cdot 10^{-5}$
Rins:	$3,7 \cdot 10^{-6}$
Baço:	$2,7 \cdot 10^{-6}$
Medula (vermelha):	$2,4 \cdot 10^{-6}$
Fígado :	$1,9 \cdot 10^{-6}$

O fator de conversão de dose para corpo inteiro para a ingestão de ^{210}Pb é $7,0 \cdot 10^{-7}$ Sv.Bq^{-1} . A tabela 22 relaciona os valores das concentrações de ^{210}Pb (média geométrica) para cada fonte e os valores de dose equivalente e dose equivalente efetiva.

4.3.2 Determinação da dose equivalente para o ^{210}Po

Os cinco órgãos mais críticos e seus correspondentes fatores de conversão de dose (Sv.Bq^{-1}) para o ^{210}Po são⁽⁶⁷⁾:

Rins:	$1,3 \cdot 10^{-5}$
Baço:	$1,1 \cdot 10^{-5}$
Fígado:	$6,6 \cdot 10^{-6}$
Medula (vermelha):	$2,6 \cdot 10^{-6}$
Osso (superfície):	$1,6 \cdot 10^{-6}$

O fator de conversão de dose para corpo inteiro para a ingestão de ^{210}Po é $1,2 \cdot 10^{-6}$ Sv.Bq^{-1} . A tabela 23 apresenta os valores das concentrações de ^{210}Po (média geométrica) de cada fonte e os valores de dose equivalente e dose equivalente efetiva.

Tabela 22 - Concentrações de ^{210}Pb (mBq.L^{-1}) e dose equivalente decorrente da ingestão de ^{210}Pb (mSv.a^{-1})

Fonte	Concentração	Órgãos críticos					Corpo inteiro
		Osso	Rins	Baço	Medula	Fígado	
Padre	6	$6,0 \cdot 10^{-2}$	$1,0 \cdot 10^{-2}$	$7,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$	$5,0 \cdot 10^{-3}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$
Paíol	8	$7,8 \cdot 10^{-2}$	$4,2 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-3}$	$8,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$
Balneário	18	$1,8 \cdot 10^{-1}$	$3,0 \cdot 10^{-2}$	$2,2 \cdot 10^{-2}$	$1,9 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-2}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$
Vitória	20	$2,0 \cdot 10^{-1}$	$3,3 \cdot 10^{-2}$	$2,4 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$	$1,7 \cdot 10^{-2}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$
P.Antiga	30	$3,0 \cdot 10^{-1}$	$4,8 \cdot 10^{-2}$	$3,5 \cdot 10^{-2}$	$3,1 \cdot 10^{-2}$	$2,5 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-3}$
P.Rad.	40	$4,0 \cdot 10^{-1}$	$6,5 \cdot 10^{-2}$	$4,7 \cdot 10^{-2}$	$4,2 \cdot 10^{-2}$	$3,3 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$
Platina	42	$4,3 \cdot 10^{-1}$	$6,9 \cdot 10^{-2}$	$5,0 \cdot 10^{-2}$	$4,4 \cdot 10^{-2}$	$3,5 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$
P.Nova	45	$4,6 \cdot 10^{-1}$	$7,3 \cdot 10^{-2}$	$5,3 \cdot 10^{-2}$	$4,7 \cdot 10^{-2}$	$3,8 \cdot 10^{-2}$	$1,4 \cdot 10^{-2}$
Vilela	326	3,3	$5,3 \cdot 10^{-1}$	$3,9 \cdot 10^{-1}$	$3,4 \cdot 10^{-1}$	$2,7 \cdot 10^{-1}$	$1,0 \cdot 10^{-1}$
S. Bento	587	5,9	$9,5 \cdot 10^{-1}$	$7,0 \cdot 10^{-1}$	$6,2 \cdot 10^{-1}$	$4,9 \cdot 10^{-1}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$
V. Gruta	903	9,1	1,5	1,1	$9,5 \cdot 10^{-1}$	$7,5 \cdot 10^{-1}$	$2,8 \cdot 10^{-1}$

Tabela 23 - Concentrações de ^{210}Po (mBq.L^{-1}) e dose equivalente decorrente da ingestão de ^{210}Po (mSv.a^{-1}).

Fonte	Concentração	Órgãos críticos					Corpo inteiro
		Rins	Baço	Fígado	Medula	Osso	
Padre	4	$2,2 \cdot 10^{-2}$	$1,8 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$4,0 \cdot 10^{-3}$	$3,0 \cdot 10^{-3}$	$2,0 \cdot 10^{-3}$
Paíol	10	$5,4 \cdot 10^{-2}$	$4,6 \cdot 10^{-2}$	$2,7 \cdot 10^{-2}$	$1,1 \cdot 10^{-2}$	$7,0 \cdot 10^{-3}$	$5,0 \cdot 10^{-3}$
Balneário	11	$6,5 \cdot 10^{-2}$	$5,5 \cdot 10^{-2}$	$3,3 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$8,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$
Vitória	12	$6,7 \cdot 10^{-2}$	$5,7 \cdot 10^{-2}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$	$1,3 \cdot 10^{-2}$	$8,0 \cdot 10^{-3}$	$6,0 \cdot 10^{-3}$
P.Antiga	17	$9,8 \cdot 10^{-2}$	$8,3 \cdot 10^{-2}$	$5,0 \cdot 10^{-2}$	$2,0 \cdot 10^{-2}$	$1,2 \cdot 10^{-2}$	$9,0 \cdot 10^{-3}$
P.Nova	30	$1,7 \cdot 10^{-1}$	$1,4 \cdot 10^{-1}$	$8,6 \cdot 10^{-2}$	$3,4 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$	$1,6 \cdot 10^{-2}$
Platina	39	$2,2 \cdot 10^{-1}$	$1,0 \cdot 10^{-1}$	$1,1 \cdot 10^{-1}$	$4,5 \cdot 10^{-2}$	$2,8 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$
P.Rad.	40	$2,3 \cdot 10^{-1}$	$1,9 \cdot 10^{-1}$	$1,2 \cdot 10^{-1}$	$4,6 \cdot 10^{-2}$	$2,8 \cdot 10^{-2}$	$2,1 \cdot 10^{-2}$
Vilela	178	1,0	$8,6 \cdot 10^{-1}$	$5,2 \cdot 10^{-1}$	$2,0 \cdot 10^{-1}$	$1,3 \cdot 10^{-1}$	$9,4 \cdot 10^{-2}$
S.Bento	335	1,9	1,6	$9,7 \cdot 10^{-1}$	$3,8 \cdot 10^{-1}$	$2,4 \cdot 10^{-1}$	$1,8 \cdot 10^{-1}$
V.Gruta	383	2,2	1,8	1,109	$4,4 \cdot 10^{-1}$	$2,7 \cdot 10^{-1}$	$2,0 \cdot 10^{-1}$

5 ANÁLISE E DISCUSSÃO DOS RESULTADOS

Nota-se pelos valores das concentrações dos radioisótopos de ^{210}Pb (tabela 19) e ^{210}Po (tabela 20) que as fontes estudadas podem ser separadas em dois grupos. As fontes Balneário, Padre, Paiol, Platina, Prata Antiga, Prata Radioativa e Prata Nova formam um dos grupos, por apresentarem valores de radioatividade inferiores a 92 mBq.L^{-1} . No outro grupo, formado pelas fontes São Bento, Vilela Gruta e Vilela, os valores de radioatividade são superiores a 120 mBq.L^{-1} .

Os grupos também se diferenciam pelos valores de pH (Tabela 21). As águas das fontes menos radioativas apresentam pH variando do neutro ao alcalino e as águas das fontes mais radioativas um pH ácido. Os valores de temperatura (Tabela 21) apresentam pouca diferença, embora nas águas das fontes menos radioativas verifica-se uma amplitude maior de temperatura em relação às demais fontes.

De acordo com a litologia das fontes, elas se classificam em dois grupos, um pertencente às rochas clásticas (arenitos), no qual encontram-se as fontes Vilela Gruta, São Bento, Vilela e Prata Radioativa, e outro pertencente às rochas alcalinas (rochas vulcânicas), no qual se encontram as fontes Paiol, Vitória, Platina, Padre, Balneário, Prata Antiga e Prata Nova.

Os valores encontrados para os níveis de radioatividade relacionam-se diretamente com a litologia das mesmas. As águas que apresentaram índices mais altos de radioatividade são as que pertencem ao grupo de arenitos. Nesse caso essas concentrações maiores de radioatividade estão relacionadas ao material argiloso que preenche as fraturas da formação arenítica e que contém em geral 0,1 a 0,2 % de óxido de urânio (U_3O_8) na sua composição. Os níveis de concentrações médias para o ^{210}Pb e ^{210}Po nesse aquífero variaram, respectivamente, de 210 a 1378 mBq.L^{-1} e de 120 a 494 mBq.L^{-1} . A fonte Prata Radioativa foi a única que apresentou um comportamento anômalo pois seus teores de chumbo e polônio são baixos. Este comportamento pode ser explicado pelo fato das águas apresentarem um pH neutro, que poderia estar favorecendo a formação de precipitados.

De uma maneira geral as fontes provenientes de aquíferos de origem vulcânica apresentam uma maior quantidade de sais dissolvidos. Pôde-se notar que, durante as análises radioquímicas, as águas oriundas dessas fontes (Vitória, Balneário, Paiol, Platina, Padre e Prata Antiga) realmente apresentaram uma maior quantidade de sólidos dissolvidos, visível durante a fase de pré-concentração das amostras por evaporação. Esta característica das águas também pode explicar o fato delas apresentarem níveis baixos de radioatividade, pois os sais dissolvidos poderiam estar deslocando o equilíbrio do chumbo dissolvido ou favorecendo a coprecipitação do polônio. As fontes pertencentes a este aquífero apresentaram baixas concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po , variando de 6 a 73 mBq.L^{-1} e de 3 a 53 mBq.L^{-1} , respectivamente.

Publicações referentes a determinações de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas minerais são menos freqüentes do que a de seus precursores ^{226}Ra e ^{238}U . A tabela 6 (item 2.2.3) apresenta algumas determinações de concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas potáveis provenientes de diferentes fontes, incluindo-se águas engarrafadas. As variações das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po encontradas em nosso estudo nas águas minerais provenientes das fontes da cidade de Águas da Prata são condizentes com os valores normais encontrados na literatura^(25, 26, 32, 36, 38, 40-46). Em localidades específicas são verificadas concentrações anômalas de ^{210}Po em águas minerais^(34, 35, 37, 39), sendo consideradas exceções.

A variação das concentrações de ^{210}Pb em águas das fontes da cidade de Águas da Prata encontradas no presente trabalho apresentam valores da mesma ordem de grandeza das verificadas em outro estudo realizado nas águas provenientes das mesmas fontes⁽²¹⁾. Este estudo, conduzido no Departamento de Radioproteção Ambiental do IPEN empregou uma metodologia diferente, que envolveu a mesma técnica de pré-concentração e de medida final da amostra e mais etapas radioquímicas de separação dos elementos interferentes. Variação na concentração de ^{210}Pb entre $<4,9 \text{ mBq.L}^{-1}$ e 1240 mBq.L^{-1} ⁽⁷⁰⁾ é verificada neste estudo.

Para se estudar uma eventual variação sazonal dos níveis de ^{210}Pb e ^{210}Po nas fontes, os resultados foram apresentados em gráficos de concentração em função da data de coleta das amostras (figuras 8 -18). As águas das fontes provenientes de arenitos apresentaram de

uma maneira geral uma variação de concentração, ao longo do ano amostrado, maior do que as fontes provenientes de aquíferos formados por rochas alcalinas.

Verifica-se que entre as águas das fontes oriundas de rochas alcalinas ocorre uma variação significativa apenas na fonte Platina (figura 10), sendo o período de maior concentração o das secas. Verifica-se ainda nas fontes Prata Radioativa (figura 15) e Vilela Gruta (figura 16) um aumento nas concentrações dos radionuclídeos durante o período de chuva, seguido de um decréscimo no início do período de seca. Já no caso da fonte Vilela (figura 18), verificou-se uma diluição no período das chuvas pois as concentrações dos radionuclídeos diminuíram neste período.

Outro dado estudado na literatura é a variação da razão isotópica entre o ^{210}Pb e o ^{210}Po . Os resultados obtidos no presente trabalho para a razão $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ encontram-se na tabela 24, variando de 0,10 a 2,61. Uma variação entre 0,42 e 0,62 para a razão $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ é encontrada em águas potáveis oriundas de fontes diversas^(25,32).

Doses equivalentes decorrentes da ingestão de ^{210}Pb e o ^{210}Po presentes nas águas estudadas foram estimadas para os cinco órgãos mais críticos e para o corpo inteiro (tabela 22 e 23). Os valores de dose equivalente efetiva decorrente da ingestão de ^{210}Pb e ^{210}Po variam entre $2,0 \cdot 10^{-3}$ e $2,8 \cdot 10^{-1} \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$ e entre $2,0 \cdot 10^{-3}$ e $2,0 \cdot 10^{-1} \text{ mSv} \cdot \text{a}^{-1}$, respectivamente. Dentre as fontes surgentes de arenitos, são encontradas nas águas das fontes São Bento e Vilela Gruta as concentrações mais altas de ^{210}Pb e ^{210}Po , conseqüentemente estima-se também para estas fontes as doses mais altas tanto para corpo inteiro como para os órgãos críticos. Apesar deste fato o número de indivíduos que bebem das águas destas duas fontes é pequeno, por serem de difícil acesso. Muito mais conhecida e freqüentada é a fonte Vilela.

Os valores de dose equivalente para o osso e de dose equivalente efetiva anual decorrente da ingestão de ^{210}Pb presentes nas águas estudadas são da mesma ordem de grandeza dos citados na literatura⁽⁴²⁻⁴⁴⁾. Nenhuma estimativa de dose equivalente para o órgão crítico decorrente da ingestão de ^{210}Po em águas minerais foi encontrada. As estimativas de dose equivalente efetiva anual decorrente da ingestão de ^{210}Po presentes nas águas estudadas são condizentes com os valores encontrados na literatura⁽⁴⁴⁾ para outras fontes.

Estimativas de dose equivalente efetiva para os radionuclídeos ^{226}Ra e $^{210}\text{Pb}^{(21)}$, ^{238}U e $^{234}\text{U}^{(69)}$, apresentadas em outros trabalhos para as mesmas fontes mostram que os radionuclídeos mais críticos são o ^{226}Ra e o ^{210}Pb . Os dados obtidos no presente trabalho para o ^{210}Po ressaltam que este radionuclídeo, embora menos estudado, apresenta a mesma radiotoxicidade do ^{226}Ra e ^{210}Pb .

A metodologia utilizada mostrou-se conveniente para a determinação das concentrações de ^{210}Pb e de ^{210}Po em águas minerais. A metodologia é prática por conter etapas simples como a evaporação no processo de pré-concentração e a precipitação do chumbo e a deposição do polônio como processos de concentração, os quais permitem a separação específica do ^{210}Pb e ^{210}Po dos outros radionuclídeos naturais eventualmente presentes nas amostras. Foram empregados no método reagentes e materiais de fácil aquisição no mercado, tornando-o viável.

A metodologia proposta por Moreira, (1993)⁽⁷⁰⁾ para a determinação de ^{210}Pb contém um número maior de separações radioquímicas sendo, portanto, mais adequada para a análise de matrizes complexas, que apresentam maior quantidade de interferentes. Comparando-se a metodologia proposta por Moreira, (1993)⁽⁷⁰⁾ com a metodologia utilizada no presente trabalho, verifica-se que a sensibilidade de ambas é da mesma ordem de grandeza.

Apesar do rendimento químico do ^{210}Po , determinado pelo traçador interno de ^{208}Po , ter variado muito, entre 0,13 e 0,78, os valores obtidos para os limites inferiores de detecção determinados para cada um dos radionuclídeos mostram que a metodologia aplicada é suficientemente sensível para determinar baixas concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po em amostras de águas minerais.

Pode-se concluir, portanto, que o método proposto mostrou-se adequado para a determinação de ^{210}Pb e ^{210}Po em águas minerais.

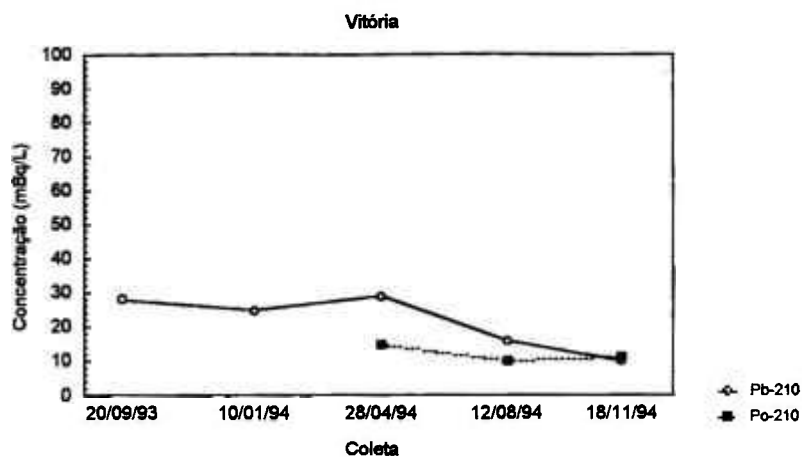


Figura 8 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Vitória.

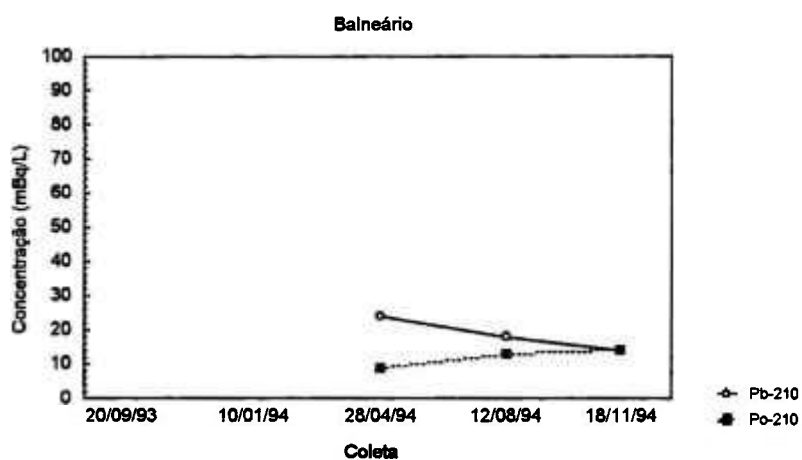


Figura 9- Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Balneário.

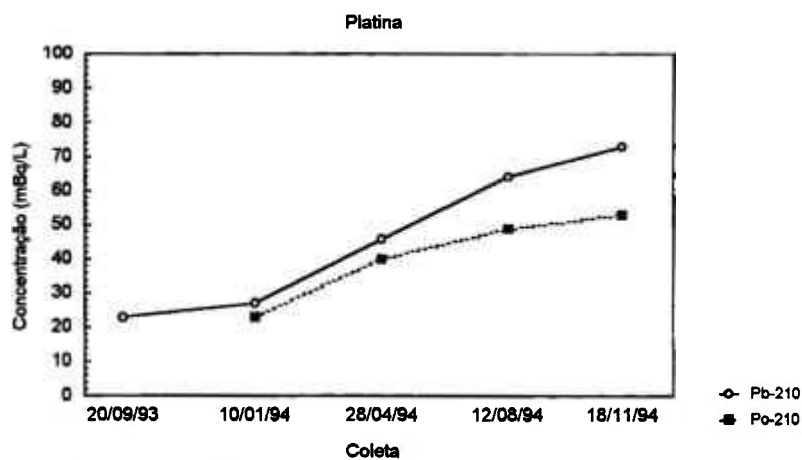


Figura 10 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Platina.

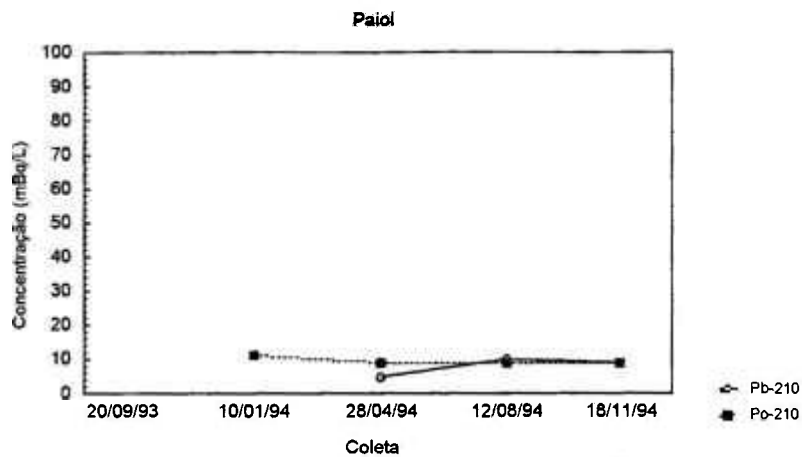


Figura 11 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte PaioI

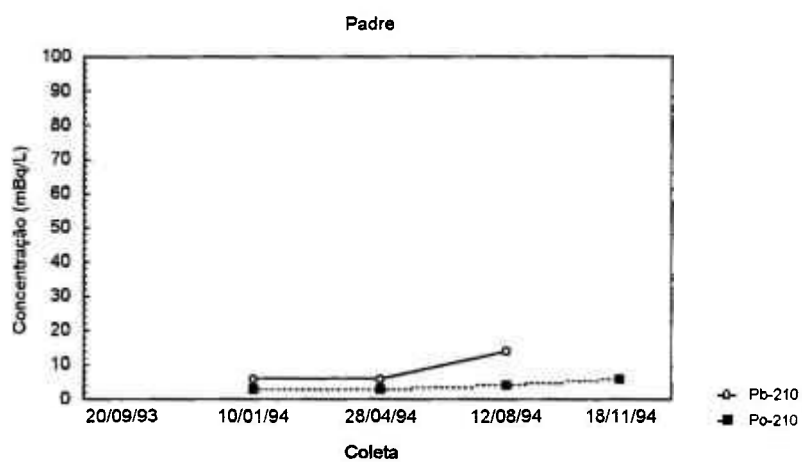


Figura 12 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Padre.

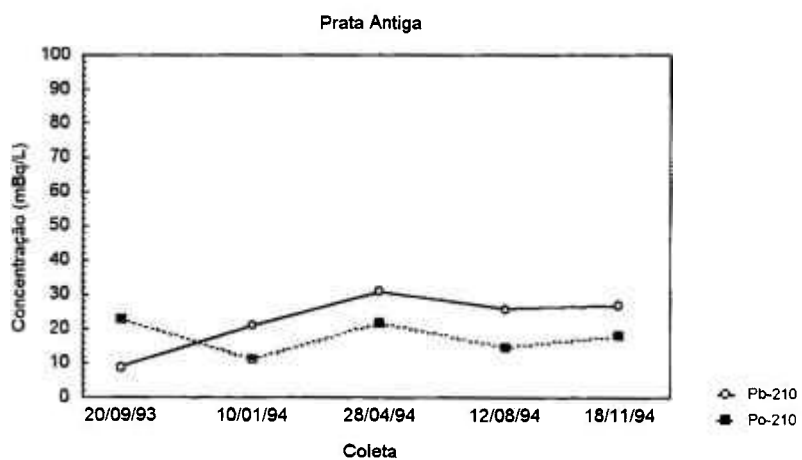


Figura 13 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Prata Antiga.

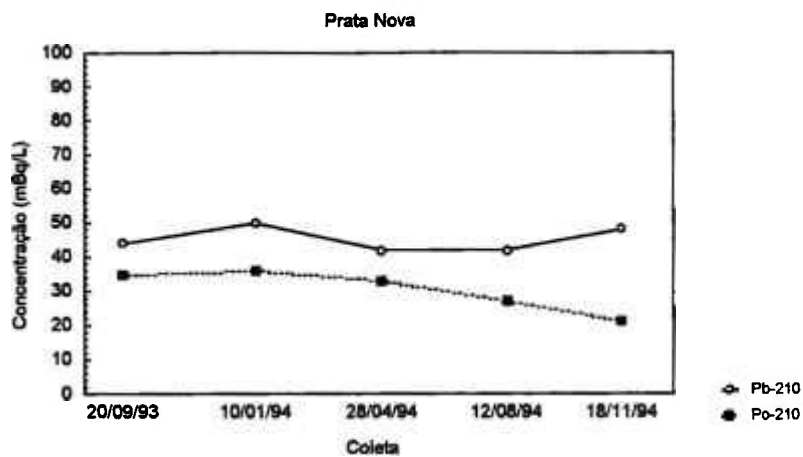


Figura 14 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Prata Nova.

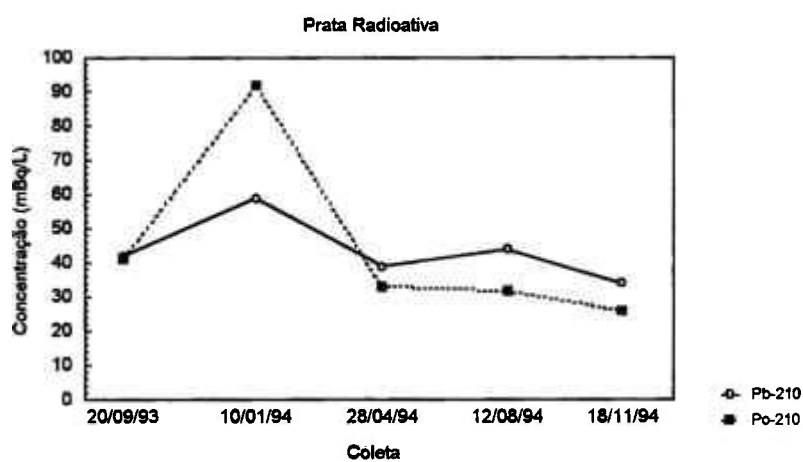


Figura 15 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Prata Radioativa.

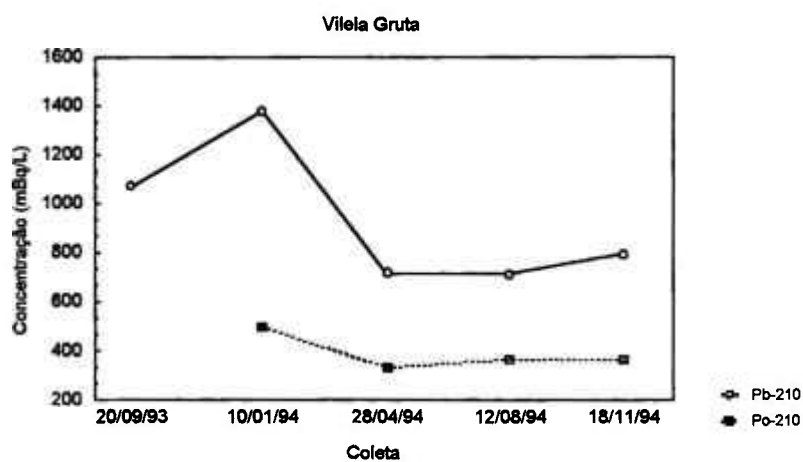


Figura 16 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Vilela Gruta.

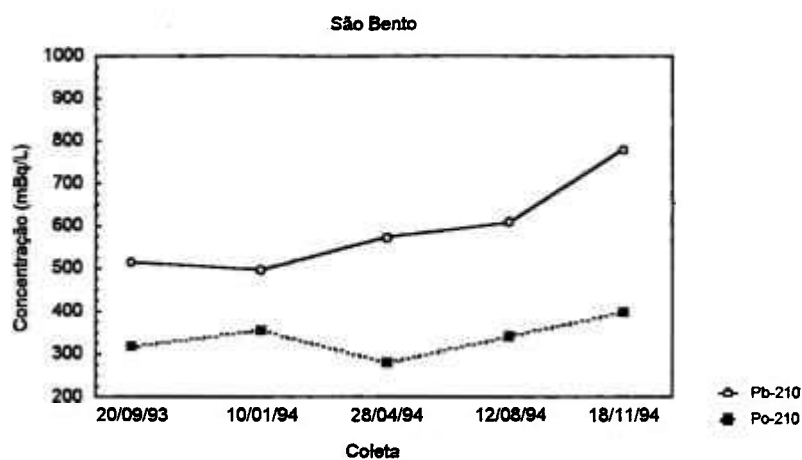


Figura 17 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte São Bento.

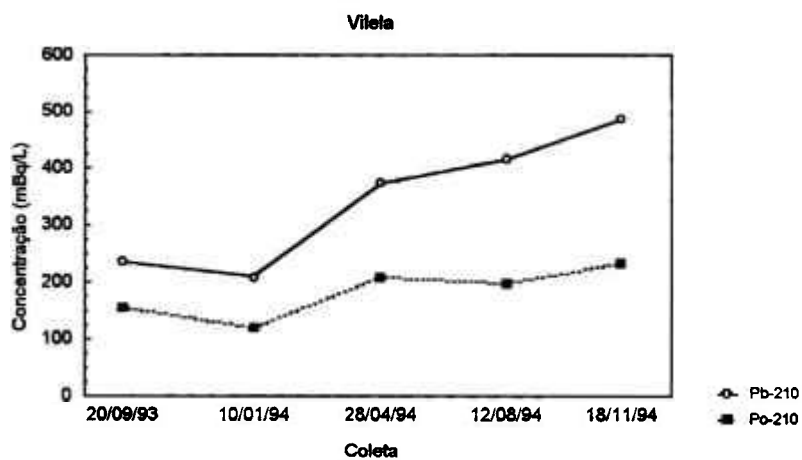


Figura 18 - Variação das concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po na fonte Vilela.

Tabela 24 - Valores para a razão $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ em cada amostra

Coleta	20/07/93	10/01/94	28/04/94	12/08/94	18/11/94	variação
Fonte						
Vitória			0,52	0,61	1,12	0,52-1,12
Balneário			0,40	0,73	0,86	0,40-0,86
Platina		0,85	0,87	0,76	0,73	0,73-0,87
Paiol			1,79	0,91	1	0,91-1,79
Padre		0,75	0,52	0,26	1,62	0,26-1,62
P.Antiga	2,61	0,52	0,70	0,10	0,67	0,10-2,61
P.Nova	0,80	0,72	0,78	0,63	0,44	0,44-0,80
P.Rad.	0,98	1,56	0,85	0,73	0,76	0,73-1,56
Vilela	0,66	0,57	0,56	0,47	0,48	0,47-0,66
V.Gruta		0,36	0,46	0,51	0,46	0,36-0,51
São Bento	0,62	0,72	0,48	0,56	0,51	0,51-0,72

6 CONCLUSÕES

As águas das fontes da Estância de Águas da Prata dividem-se em dois grupos, distinguidos pelos valores de radioatividade e pelas características físico-químicas diferentes. Tais diferenças resultam da litologia das fontes por onde as águas circulam.

Os níveis de concentrações médias para o ^{210}Pb e o ^{210}Po variam respectivamente de 6 a 73 mBq.L^{-1} e de 3 a 53 mBq.L^{-1} nas águas que circulam em aquíferos formados por rochas vulcânicas (fontes Paiol, Vitória, Platina, Padre, Balneário, Prata Antiga e Prata Nova) e de 210 a 1378 mBq.L^{-1} e de 120 a 494 mBq.L^{-1} nos aquíferos formados por arenitos (fontes Vilela Gruta, São Bento e Vilela).

As fontes Vilela, Vilela Gruta e São Bento apresentam águas pouco mineralizadas, com pH ao redor de 5 (ácidas) e temperaturas inferiores a 22°C (fontes frias).

As concentrações do precursor ^{210}Pb são maiores do que as do descendente ^{210}Po em quase todas as amostras analisadas. Isto é verificado pelo valor da razão Po/Pb, o qual é normalmente menor que um, indicando que a concentração do descendente ^{210}Po é menor que a do seu precursor. Poucas inversões neste equilíbrio foram observadas (Prata Radioativa, Pratas Antiga e Paiol). Nas águas provenientes de arenitos (excetuando-se as da fonte Prata Radioativa) verifica-se um desequilíbrio maior.

As concentrações determinadas para o ^{210}Pb e o ^{210}Po mostram que a presença de ^{210}Po nestas águas é sustentada pelo precursor o ^{210}Pb .

Verificou-se em alguns casos uma variação nas concentrações de ^{210}Pb e ^{210}Po nas águas amostradas ao longo do ano. Esta variação esta relacionada com a precipitação atmosférica. No verão quando a precipitação atmosférica é maior ocorre a diluição das concentrações dos radionuclídeos. Este comportamento é notado nas fontes Platina e Vilela.

Esta diluição também ocorre nas águas das fontes da Prata Radioativa e Vilela Gruta porém esta manifesta-se entre as estações de chuva e seca.

As doses equivalentes efetivas obtidas para o ^{210}Po e o ^{210}Pb são da mesma ordem de grandeza das obtidas para o ^{226}Ra devido à ingestão das águas minerais analisadas. Este fato por si só, justifica a proposta do presente trabalho. Pode-se concluir que esses radionuclídeos são os mais críticos do ponto de vista radiológico.

7 REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

- 1) EISENBUD, M. *Environmental Radioactivity from natural, industrial and military sources*. 3. ed. Academic Ppress,Inc. 1987.
- 2) KATHREN, R. L. *Radioactivity in the Environment* Harwwood Academic Publishers. 1984.
- 3) KLEMENT, A. W. *Handboook of Environmental Radiation: sources distribution, and surveillance*. CRC Press. 1982.
- 4) WHICKER, F.W. ; SCHULTZ, V. *Nuclear Energy and Environment*. Boca Raton. CRC. 1982. v.1.
- 5) NCRP Report nº 94. *Exposure of Population in the United States and Canada from Natural Background Radiation*. 1987.
- 6) Lawrence Berkeley Laboratory. *Instrumentation for Environmental Monitoring*, v.1, Radiation. Environmental Instrumentation Survey.1983.
- 7) NCRP Report nº 50. *Environmental Radiation Measurements*. 1976.
- 8) OSBURN, W.S. Primordial Radionuclides: their distribution, movement and possible effect within terrestrial ecosystem. *Health Phys.*, v.11, pp.1275-95, 1965.
- 9) HOWELL, B.F. *Intoduction to Geophysics*. McGraw Hill, New York. 1959.
- 10) ADAMS, J.A.S. The Geological origins of radioactive anomalies. *Simpósio Internacional sobre Áreas de Elevada Radioatividade Natural*, Thomas L Cullen e Eduardo Penna Franca eds., pp. 4-14, 1977.

- 11) EISENBUD, M. Summary Report. *Simpósio Internacional sobre Áreas de Elevada Radioatividade Natural*, Thomas L. Cullen e Eduardo Penna Franca eds., pp. 167-180, 1977.
- 12) **Radiation**: doses, effects, risks. UNEP. 1985.
- 13) **UNSCEAR** 1993 Report.
- 14) ROSHOLT, J.N. Natural Radiactive Disequilibrium of the Uranium series. *U.S. Geological Survey bulletin* 1084A.1959.
- 15) TANNER, A.B. *The Natural Radiation Environment*. (J.A.S. Adams e W.M. Lowder eds.). Cap. 9, p. 161, 1964.
- 16) ROSER, F.X. ; KEGEL, G. ; CULLEN, T.L. Radiogeology of some high background areas of Brazil. *The Natural Radiation Environment*. (J.A.S. Adams e W.M. Lowder eds.). Cap. , p. 857, 1964.
- 17) HAINBERGER, P.L. et al. *Radioactivity in Brazilian mineral waters*. Rad. Data and Rep., aug., pp.483-488, 1974.
- 18) PIRES de RIO, H.A., et al. ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{210}Pb concentrations in Brazilian Mineral Waters. *Radiat. Prot. Dosim.*, v. 1/4, pp. 159-161, 1988.
- 19) LONGO, O. W. Águas radioativas no Estado de São Paulo. *Rev. Inst. Geog. Geo.*, v. 19, pp. 27-48, 1967.
- 20) CAMARGO, I.M.C. *Determinação da concentração dos isótopos naturais de urânio e tório em amostras de água*. São Paulo: 1994. Dissertação: (Mestrado). IPEN.

- 21) OLIVEIRA, J. ; MOREIRA, S. R. D.; MAZZILLI, B. Natural radioactivity in mineral springs waters of a highly radioactive region of Brazil and consequent population doses. *Radiat. Prot. Dosim.*, v. 55 (1) pp. 57-59, 1994.
- 22) SAMPA, M.H.O. *Estudo e desenvolvimento de Métodos para determinação da radioatividade natural em águas*. São Paulo IEA-DT-130. Dissertação (Mestrado). Instituto de Energia Atômica.
- 23) WRENN, M.E. Internal Dose Estimates. *Simpósio Internacional sobre Áreas de Elevada Radioatividade Natural*. Thomas L. Cullen e Eduardo Penna Franca eds., pp.131-159, 1977.
- 24) BENNETT, S.L.; SANDALS, F.J. ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po in the human environment. MAFF/AEA-EE-0074.
- 25) PARFENOV, Y.D. ^{210}Po in the Environment and in the Human Organism. *Atom. Energy Rev.*, v.12, pp. 75-143, 1974.
- 26) JAWOROWSKI, Z. Radioactive Lead in the Environment and in the Human body. *Atom. Energy Rev.*, v.12, pp. 3-45. 1969.
- 27) GIBSON, W. M. *The Radiochemistry of Lead*. National Academy of Science, National Research Council. 1961.
- 28) FIGGINS, P. E. *The Radiochemistry of Polonium*. Mound Laboratory Miarnisbury, Ohio. 1961
- 29) MIKHEEV, N. B. Polonium. *Chemiker Zeit.*, 9, jahrgang 102, pp. 277-86.
- 30) BAGNALL, K.W. The Chemistry of Polonium. *Radiochim. Acta*, v. 32, pp. 153-61, 1983.

- 31) RANKAMA, K. *Progress in Isotope Geology*. Interscience Publishers. 1963.
- 32) LANDISKAYA, L.A., et al. ^{210}Pb and ^{210}Po content in air, water, foodstuffs, and the human body. *Arch. Environ. Health*, v. 27, pp. 254-258, 1973.
- 33) MOORE, H.E., et al. Sources of ^{210}Po in atmosphere. *Environ. Science Techn.*, v.10, pp. 586-591, 1976.
- 34) COWART, J.B. et al. Occurrence of ^{210}Po in natural wates in Florida. *Trace Subst. Environ. Health*, v. 21, pp. 172-85, 1987.
- 35) HARADA, K. et al. Polonium in Florida groundwater and its possible relationship to the sulfur cycle and bacteria. *Geochim. Cosmoch. Acta*, v. 53, pp. 143-50, 1989.
- 36) KAUFMANN, R.F.; EADIE, G.G.; RUSELL, C.R. Effects of uranium mining and milling on ground water in the Grants Mineral Belt, New Mexico. *Ground Water*, v.14, n. 5, pp. 16-25, 1976.
- 37) MULLIN, A. Abnormally high alpha activity in a Lousiana drinking water supply. *The 27th Annual Meeting, Health Physics Society*. Las Vegas. 1982.
- 38) KRISHNASWAMI, S. et al. Radium, thorium and radioactive lead isotopes in groundwater: application to the in situ determination of adsorption-desorption rate constants and retardation factors. *J. Water Res. Research*, v.18, pp.1633-75, 1982.
- 39) NARITA, H. et al. Determinationn of ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po in natural waters and other materials by eletrochemical separation. *Talanta*, v. 36, n. 9, pp. 925-9, 1989.

- 40) GÖBEL, B.; MUTH, M.; OBERHAUSEN, E. Aufnahme und Ausscheidung der Natürlich Radionuklide ^{210}Pb durch den Menschen. *Strahlentherapie*, 131, s.218-26, 1966.
- 41) SCHÜTTELKOPF, H.; KIEFER, H. The ^{226}Ra , ^{210}Pb and ^{210}Po contamination of the Black Forest. *Natural Radiation Environment*. Vohra, K.G. ed. 1981.
- 42) GANS, I. Natural radionuclides in mineral waters. *Sci. Total Environ.*, v.45, pp. 93-99, 1985.
- 43) BETTENCOURT, A.O. et al. Natural radioactivity in Portuguese mineral waters. *Radiat. Prot. Dosim.*, v.24, n. 1/4, pp. 139-42, 1988.
- 44) SALONEN, L. Natural radionuclides in ground water in Finland. *Radiat. Prot. Dosim.*, v.24, n.1/4, pp. 163-6, 1988.
- 45) AELLEN T.C. et al. The analysis of naturally-occurring radionuclides from uranium and thorium decay-series in table waters. *Sci. Total Environ.* v. 130/1, pp. 253-9, 1987.
- 46) COOPER, M.B. et al. Natural Radioactivity in bottled mineral waters available in Australia. ARL/TR 036. 1981.
- 47) *UNSCEAR* Report. 1977.
- 48) *Nuklidkarte*. Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH. 1981.
- 49) FUJIMORE, K. *Minerais radioativos do Campo Agostinho, Poços de Caldas*. Tese de Livre Docência, 1974. IG/USP.

- 50) SZIKSZAY, M. T *Hidrogeoquímica das fontes de Águas da Prata, Estado de São Paulo: origem, classificação e caracterização*. Tese de Livre Docência, 1981. IG/USP.
- 51) FRAYA, R. Ocorrências uraníferas no arenito de Águas da Prata, São Paulo. *Eng. Min. e Met.* , vol XXVI n. 154, p. 201-208, 1957.
- 52) BUNZL, K. ; KRACKE, W. ^{210}Pb and ^{210}Po in liver and kidneysof Cattle-I. Animals from an area with little traffic or industry. *Health Phys.* v. 37, p. 322-330, 1979.
- 53) HOLTZMAN, R. B. The determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in biological environmental materials. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 115 (1): 59-70, 1987.
- 54) MACKENZIE, A.B.; SCOTT, R.D. Separation of ^{210}Bi and ^{210}Po from aqueous solutions by spontaneous adsorption on copper foils. *Analyst* v.104, pp. 1151-8, 1979.
- 55) JUZNIC, K.; KOBAL, I. Radiochemical determination of ^{210}Po and ^{210}Pb in water. *J. Radioanal. Nucl. Chem, Articles*, v. 102, n. 2, pp. 493-8, 1986.
- 56) EHINGER, S.C.; PACER, R.A.; ROMINES, F.L. Separation of the radioelements ^{210}Bi - ^{210}Pb - ^{210}Po by spontaneous deposition onto noble metals and verification by Cherenkov and liquid scintilation counting. *J. Radioanal. Nucl. Chem, Articles*, v. 98, n. 1, pp. 39-48, 1986.
- 57) BLACK, S.C. Low-level polonium and radiolead analysis. *Health Phys.*, v. 7, pp.87-91. 1961.
- 58) SMITH, J.D.; HAMILTON, T.F. Improved technique for recovery and measurement of ^{210}Po from environmental materials. *Anal. Chimica Acta* v. 160, pp. 69-77, 1984.

- 59) DILLARD, J.W.; HOBBS, B.B. Galvanic depositions of ^{210}Po at a rotating nickel disk electrode. *Nuclear Inst. Meth.* v. 169, pp. 627-8, 1980.
- 60) MOSKVIN, L.N. et al. Determination of polonium in aqueous media using metal-containing membranes. *J. Radioanal. Nucl. Chem, Letters*, v. 175, n. 6, pp. 455-66, 1993.
- 61) TABLOT, W.R.; ANDREN, A.W. Seasonal variation of ^{210}Pb and ^{210}Po concentrations in a oligotrophic lake. *Geochim. Cosmochim. Acta*, v.48, pp. 2053-63, 1984.
- 62) FLYNN, W.W. The determination of low-levels of ^{210}Po in environmental materials. *Anal. Chim. Acta*, v. 43, pp. 221-7, 1968.
- 63) FINK, R. M. *Biological Studies with Polonium, Radium and Plutonium*. McGraw-Hill, New York. 1950.
- 64) GODOY, J. M.; SCHÜTTELKOPF, H. Eine radiochemische Methode zur Bestimmung von ^{210}Po in Umweltmaterialien. *KfK*, n. 2987.1980.
- 65) BATEMAN, H. *Proc. Cambridge Phil. Soc.* , v. 15, p.423, 1910.
- 66) Regulatory Guide 4.14. *United States Nuclear Regulatory Commission*. 1980.
- 67) *ICRP* Publication 67. Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides, Part 2 Ingestion Dose Coefficients. 1993.
- 68) *ICRP* Publication 23. Report of the Task Groups on Reference Man. 1975.
- 69) CAMARGO, I.M.C.; MAZZILLI, B. Determination of Uranium and Thorium isotopes in Mineral Spring Waters. *J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters*, v.212 n. 4, pp. 251-58. 1996.

- 70) MOREIRA, S.R.D. *Determinação de ^{210}Pb em águas minerais da região de Águas da Prata* Dissertação (Mestrado), 1993. IPEN.