

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

INSTITUTO DE ASTRONOMIA, GEOFÍSICA E CIÊNCIAS ATMOSFÉRICAS

**CONCENTRAÇÃO DE ATIVIDADE DO ^{222}Rn E DO ^{226}Ra NAS ÁGUAS
SUBTERRÂNEAS EXTRAÍDAS DE FRATURAS DOS GRANITOS DE
MORUNGABA E DAS ROCHAS METAMÓRFICAS ENCAIXANTES**

FABIO DE OLIVEIRA LUCAS

**Tese apresenta como parte dos
requisitos para obtenção do Grau
de Doutor em Ciências na Área de
Geofísica.**

Orientador:

Dr. Fernando Brenha Ribeiro

SÃO PAULO

2009

Dedico este trabalho aos meus pais
Paulo e Jarilde

Tenho tido, frequentemente, motivos para sentir que minhas mãos são mais hábeis que minha mente. Esta é uma forma rude de caracterizar o dialeto da experimentação. Quando tudo ocorre bem, é como uma tranquila conversa com a Natureza. Faz-se uma pergunta e obtém-se uma resposta; faz então a próxima pergunta, e obtém-se a resposta seguinte. Depois disso, pode-se somente ouvir.

AGRADECIMENTOS

Ao Prof. Dr. Fernando Brenha Ribeiro por toda a dedicação, compreensão e amizade patenteadas.

À Prof^a. Dr^a. Leila Soares Marques pela valiosa e dedicada colaboração.

Ao Prof. Dr. Francisco Hiodo pela atenção e acompanhamento na realização deste trabalho.

Aos Professores Dr. Éder Molina e Dr. Jorge Porsani pelo bom humor, dedicada colaboração e incentivo demonstrado.

À Rosana Nunes e Roberto Keiji, pela paciência e colaboração no laboratório.

Às funcionárias da biblioteca pela atenção e inúmeros favores.

Às secretárias do departamento e da pós-graduação.

À Marina Leite, por ter me apoiado em todos os momentos de dificuldades.

À Michelly Wiese, por todos os bons comentários e palavras de estímulo.

À Viviane Farias, Melissa e Ícaro, por todo o carinho, paciência e dedicação, durante os momentos finais de elaboração dessa tese.

A todos meus amigos e colegas, em especial a Alexandre Lago, Welitom Borges, Danillo Oliveira, Igor Chaves, Pedro Mineiro e Gabriel Silva pelas oportunas manifestações de companheirismo e de encorajamento.

Ao Sr. Pierre Alexis Fonteyne, proprietário do poço 1.

A rede de supermercados Covabra, em especial ao Sr. Rodnei Barros, proprietários do poço 2.

A Dover do Brasil, em especial ao Sr. João Almeida, proprietária do poço 3.

Ao Sr. César Augusto Dientzien, proprietário do poço 4.

Ao DAEE, Valinhos, por permitirem o acesso ao poço 5.

A CAPES - BOLSA de cota do Programa de Pós-Graduação em Geofísica do IAG-USP.

Ao CNPq - bolsa processo 141475/2007-2

RESUMO

Concentrações de atividade de ^{226}Ra e de ^{222}Rn foram medidas em amostras de água subterrânea extraídas de fraturas presentes nos granitos que formam o batólito de Morungaba e nos gnaisses e granito-gnaisses que fazem parte das rochas metamórficas encaixantes das intrusões. As amostras de água foram coletadas periodicamente em cinco poços, com um intervalo médio de um mês entre as coletas, e em dois períodos distintos. Entre julho de 2005 e agosto de 2006, em três poços localizados no embasamento metamórfico, e entre fevereiro de 2007 e abril de 2008, nos dois poços restantes, que foram perfurados nos granitos.

Os resultados obtidos, junto com dados já publicados, mostram concentrações de atividade do ^{222}Rn muito variáveis, com valores médios anuais situados no amplo intervalo de 26 Bq/dm^3 e 1275 Bq/dm^3 , nas águas extraídas das fraturas nas rochas metamórficas. As rochas graníticas apresentam concentrações de atividade mais altas, com valores médios anuais de 1307 Bq/dm^3 em um dos poços e de 2390 Bq/dm^3 no outro. Todos os poços mostram uma clara dependência da concentração de atividade das suas águas com a precipitação de chuvas, com máximos locais nas curvas de variação das concentrações deslocados entre dois e três meses em relação aos máximos locais de precipitação.

As concentrações de atividade de ^{226}Ra variam em um intervalo muito mais estreito. As águas extraídas das rochas metamórficas apresentam concentrações de atividade do ^{226}Ra entre, aproximadamente, 2 mBq/dm^3 e 10 mBq/dm^3 , enquanto que as águas extraídas das rochas graníticas têm concentração de atividade no intervalo entre 10 mBq/dm^3 e 60 mBq/dm^3 . Não foi observada nenhuma dependência entre as concentrações de atividade de ^{226}Ra com a precipitação de chuva.

As concentrações de ^{222}Rn e de ^{226}Ra são características de cada poço, a ponto de se poder individualizar os dados provenientes de cada um em um diagrama cartesiano onde as concentrações de ^{222}Rn são representadas no eixo das ordenadas e as de ^{226}Ra são representadas nos eixo das abscissas.

ABSTRACT

Radon (^{222}Rn) and radium (^{226}Ra) activity concentrations were measured in ground water samples drawn from fractures on the Morungaba batholith granites and on gneisses and granite-gneisses of the surrounding metamorphic basement, at eastern São Paulo State, Brazil. Three wells drilled on the metamorphic rocks were sampled between July, 2005, and August, 2006, and two wells drilled on the granites were sampled between February, 2007, and April 2008. Water was periodically collected with an interval of about one month between samples.

The obtained results, together with data already available in the literature, show variable ^{222}Rn activity concentrations, with annual means in the broad range between 26 Bq/dm^3 and 1237 Bq/dm^3 , for the ground waters drawn from the wells drilled in the metamorphic basement. Ground water drawn from the granites are more enriched in ^{222}Rn , with mean activity concentrations of 1307 Bq/dm^3 for one of the wells and of 2390 Bq/dm^3 for the other well. In all five wells, ground water show a clear correlation with rain fall, with the local maxima in the activity concentration curves delayed two to three months in relation to the local maxima in the precipitation curves.

Radium (^{226}Ra) activity concentrations varied in a narrower range. The ground water drawn from the wells on the metamorphic terrain show concentrations between 2 mBq/dm^3 and 10 mBq/dm^3 . The ground water drawn from the wells on the granites show concentrations between 10 mBq/dm^3 and 60 mBq/dm^3 . The radium activity concentrations do not show any relation to rain fall.

The ^{222}Rn and ^{226}Ra activity concentrations seem to be characteristic of the water drawn from each well. It is possible to clearly individualize each well data in a cartesian diagram were the ^{222}Rn activity concentration is represented by the ordinate axis and the ^{226}Ra activity concentration is represented by the abscissas axis.

SUMÁRIO

AGRADECIMENTOS	iii
RESUMO	iv
ABSTRACT	v
SUMÁRIO	vi
LISTA DE TABELAS	viii
LISTA DE FIGURAS	ix
1. INTRODUÇÃO	1
2. OCORRÊNCIA DE ^{222}Rn E ^{226}Ra EM ÁGUAS SUBTERRÂNEAS	5
2.1 ^{222}Rn e ^{226}Ra em águas subterrâneas	6
2.2 Transporte de rádio e radônio em fraturas	8
2.2.1 Radônio	8
2.2.2 Rádio	9
3. CONTEXTO GEOLÓGICO E RADIOATIVIDADE DAS ÁGUAS	11
4. LOCALIZAÇÃO E DESCRIÇÃO DOS POÇOS PARA COLETA DE AMOSTRAS E PROCEDIMENTOS DE AMOSTRAGEM	17
4.1 Localização dos poços e descrição litológica	17
4.2 Coleta de água e extração do radônio dissolvido	22
4.2.1 Procedimento adotado às coletas de água entre julho de 2005 e agosto de 2006	22
4.2.2 Procedimento adotado às coletas de água entre abril de 2007 e março de 2008	24
5. MATERIAIS E MÉTODOS	27
5.1.1 Determinação das concentrações de atividade de ^{226}Ra	27
5.1.2 Procedimento radioquímico para extração de ^{226}Ra	27
5.1.3 Calibração do sistema de extração de ^{222}Rn	31
5.1.4 Contagem de fundo e limites de detecção	34

5.1.5 Determinação da eficiência do processamento radioquímico	34
5.2 Determinação das concentrações de atividade de ^{222}Rn – poços 1, 2 e 3.....	35
5.2.1 Procedimento de calibração do sistema de extração para determinação da concentração de atividade do ^{222}Rn	35
5.2.2 Processamento dos dados	38
5.3 Determinação das concentrações de atividade de ^{222}Rn – poços 4 e 5.....	42
6. RESULTADOS E DISCUSSÃO	50
6.1 O comportamento das concentrações de atividade de ^{222}Rn	50
6.2 O comportamento das concentrações de atividade de ^{226}Ra	72
6.3 Dependência das concentrações de atividade do ^{222}Rn e do ^{226}Ra com o tipo de rocha do aquífero fraturado.....	89
7. CONCLUSÃO	92
8. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	94
ANEXOS	

LISTA DE TABELAS

Tabela 2.1 – Concentração, média geométrica, de ^{222}Rn , ^{226}Ra e U, em águas subterrâneas extraídas de diferentes tipos de aquíferos.....	7
Tabela 4.1 – Dados gerais dos poços utilizados para coleta de água. Os valores de vazão correspondem aos testes de bombeamento após a conclusão dos poços.....	18
Tabela 5.1 – Calibração do procedimento de medida de atividade de ^{222}Rn dissolvido.....	37
Tabela 5.2 – Coeficientes das retas de calibração dos detectores (Fabricante EDA).....	46
Tabela 6.1 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 1.....	54
Tabela 6.2 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 2.....	56
Tabela 6.3 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 3.....	58
Tabela 6.4 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 4.....	66
Tabela 6.5 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 5.....	68
Tabela 6.6 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 1.....	75
Tabela 6.7 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 2.....	77
Tabela 6.8 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 3.....	79
Tabela 6.9 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 4.....	85
Tabela 6.10 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 5.....	87

LISTA DE FIGURAS

Figura 3.1 – Mapa dos corpos ígneos dos granitóides de Morungaba: <u>COV</u> : Complexo Ouro Verde; <u>LMh</u> : Ocorrências Meridionais; <u>PAB</u> : Plúton Areia Branca; <u>PI</u> : Plúton Itatiba; <u>PJ</u> : Plúton Jaguari; <u>PM</u> : Plúton Meridional; <u>PO</u> : Plúton Oriental (modificado de Vlach, 1993)	12
Figura 3.2 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra , dissolvido em solução, como função do tempo entre março de 2003 e abril de 2004 (Lucas e Ribeiro, 2006)	13
Figura 3.3 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra , em material particulado, como função do tempo entre março de 2003 e abril de 2004 (Lucas e Ribeiro, 2006)	14
Figura 4.1– Mapa de localização dos granitóides de Morungaba e sua localização (SP). As referências 1, 2, 3, 4 e 5 indicadas no mapa representam os pontos de localização dos poços	17
Figura 4.2– Perfil litológico do poço 1	19
Figura 4.3 – Perfil litológico do poço 2	19
Figura 4.4 – Perfil litológico do poço 3	20
Figura 4.5 – Perfil litológico do poço 4	21
Figura 4.6 – Perfil litológico do poço 5	21
Figura 4.7 – Frasco utilizado na coleta água para extração de gás radônio	22
Figura 4.8 – Representação esquemática das coletas realizadas no campo	23
Figura 4.9 – Linha portátil de extração de gás radônio dissolvido em águas subterrâneas	24
Figura 5.1 – Conjunto de elementos pertencentes ao sistema de filtração	27
Figura 5.2 – (A) Aparelhagem utilizada na filtração e remoção do sobrenadante. (B) equipamento adaptado para coletar o precipitado formado	29
Figura 5.3 – Frasco de acumulação	30
Figura 5.4 – Arranjo experimental (linha de extração e unidade aquisitora de dados)	31
Figura 5.5 – Célula de Lucas	32
Figura 5.6 – Curva de calibração do detector 1801	33
Figura 5.7 – Curva de calibração do detector 1804	33
Figura 5.8 – Frasco lavador de gás utilizado no procedimento de calibração	42
Figura 5.9 – Unidade aquisitora de dados AB5 – Pylon (Sistema eletrônico)	43
Figura 5.10 - Curva de calibração do detector 08	47
Figura 5.11 – Curva de calibração do detector 13	47
Figura 5.12 – Detector cintilador – EDA	48

Figura 6.1 – Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 1	51
Figura 6.2 – Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 2	52
Figura 6.3 – Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 3	53
Figura 6.4 – Variação de temperatura observada nos poços 1, 2, e 3 entre julho de 2005 e agosto de 2006	60
Figura 6.5 – Variação do pH observada nos poços 1, 2, e 3 entre julho de 2005 e agosto de 2006.....	61
Figura 6.6 – Variação das chuvas observadas durante abril de 2005 e julho de 2006	62
Figura 6.7– Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 4	63
Figura 6.8 – Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 5	64
Figura 6.9 – Variação de temperatura observada nos poços 4 e 5 entre abril de 2007 e abril de 2008.....	70
Figura 6.10 – Variação de pH observada nos poços 4 e 5 entre abril de 2007 e abril de 2008.....	71
Figura 6.11 - Variação da precipitação na região de Amparo entre outubro de 2006 e março de 2008	71
Figura 6.12 – Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 1	73
Figura 6.13 – Variação de temperatura observada nos poços 1, 2, e 3 entre maio de 2005 e julho de 2006.....	75
Figura 6.14 – Variação de pH observada nos poços 1, 2 e 3 entre abril de 2005 e junho de 2006	81
Figura 6.15 – Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 2	82
Figura 6.16 – Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 3	82
Figura 6.17 – Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 4	83
Figura 6.18 – Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 5	84
Figura 6.19 – Comparação entre os valores de concentração de atividade de ^{222}Rn e ^{226}Ra	90
Figura 6.20 – Comparação entre as concentrações de atividade de ^{222}Rn e de ^{226}Ra nas águas extraídas dos poços perfurados no embasamento metamórfico	91

1. INTRODUÇÃO

À medida que se infiltra no solo, a partir da superfície, e escoar através de poros interconectados ou de fraturas para formar diferentes tipos de aquíferos, a água subterrânea progressivamente se enriquece em nuclídeos pertencentes às três séries radioativas naturais e presentes na matriz sólida dos solos, sedimentos e das rochas. A transferência desses nuclídeos para a água e a sua permanência em solução é, em grande parte, regida por suas propriedades químicas. Como as séries radioativas incluem elementos químicos de grupos e famílias muito diferentes da tabela periódica, as diferenças de comportamento geoquímico também são muito grandes. No entanto, existe um mecanismo físico que promove a transferência, da matriz sólida para a água, de nuclídeos que são produtos de desintegração alfa, independentemente da sua natureza química.

Na desintegração alfa, a energia liberada pelo núcleo radioativo é repartida entre o núcleo residual e a partícula alfa produzida no processo. Enquanto que a partícula alfa carrega consigo a maior fração da energia da desintegração, definida pela razão entre a massa do núcleo residual e a soma das massas do núcleo residual e da partícula alfa, o núcleo residual se move com um momento linear de módulo igual ao da partícula alfa, mas com sentido oposto.

Sendo um íon pesado e totalmente ionizado imediatamente após a desintegração, o núcleo em recuo ioniza fortemente o material ao seu redor à medida que progressivamente perde a sua energia cinética ao longo de uma trajetória que, nos sólidos tem uma dimensão típica da ordem de 10 a 30 nm. Se o núcleo radioativo inicial estiver mais próximo da superfície de um grão ou de uma fissura da matriz sólida do que o comprimento da trajetória do núcleo residual e se a trajetória apontar nessa direção, o núcleo residual escapa do grão entrando no espaço de poro. Como o comprimento da trajetória do núcleo em recuo nos fluídos é muito maior do que nos sólidos, existe a possibilidade de que uma parte dos íons em recuo atravesse o espaço de poro e se interne em um grão vizinho. Por outro lado,

uma vez que o comprimento da trajetória do núcleo em recuo nos líquidos é pelo menos uma ordem de grandeza menor do que nos gases¹, a presença de água no espaço de poro aumenta significativamente a taxa de escape em comparação com a taxa observada com o poro seco (Tanner, 1964, 1980; Semkow, 1990).

Existem ainda efeitos secundários associados à desintegração alfa. A dissipação da energia cinética transportada pelo íon em recuo ocorre em um intervalo de tempo suficientemente curto para fundir, ou mesmo vaporizar localmente o sólido. Uma vez dissipado o calor, a estrutura do sólido fica perturbada ao longo da trajetória e se torna vulnerável a dissolução química em contato, por exemplo, com a água. Dessa forma, um núcleo em recuo que atravessou o espaço de poro e se internou em um grão da matriz sólida pode ser transferido para a solução (Fleischer ; Raabe, 1978).

A consequência do recuo do núcleo residual da desintegração alfa, associado a outros processos de natureza geoquímica, é o desequilíbrio radioativo nas séries radioativas, tanto na água quanto na matriz sólida. Em particular, o desequilíbrio radioativo na série do urânio é observado de forma praticamente universal em águas superficiais e subterrâneas (ver, por exemplo, Ivanovich e Harmon, 1990, para uma revisão geral).

Uma fração importante da radioatividade natural das águas subterrâneas é devida à presença dos nuclídeos ²²⁶Ra e, principalmente, ²²²Rn. Respectivamente o sexto e o sétimo produtos de desintegração da série radioativa encabeçada pelo ²³⁸U, o ²²⁶Ra é produzido após uma seqüência de três desintegrações alfa e duas desintegrações beta, enquanto que o ²²²Rn é produzido pela desintegração alfa desse isótopo do rádio. A transferência desses dois nuclídeos do sólido para o espaço de poro é favorecida pelo processo de recuo do núcleo residual, tanto diretamente quanto indiretamente, devido às desintegrações alfa do ²³⁸U e do ²³⁴U.

O ²²²Rn normalmente se apresenta em forte desequilíbrio em relação ao seu predecessor na série do urânio, o ²²⁶Ra. Enquanto que a concentração de atividade

¹ Nos sólidos, cristalinos ou amorfos, a trajetória dos núcleos residuais produzidos por desintegração alfa tem comprimentos da ordem de 10 a 30 nm. Na água, o comprimento das trajetórias é da ordem 0,1 µm e no ar seco, da ordem de 60 a 90 µm. A presença de umidade no ar diminui significativamente o alcance dos núcleos residuais em recuo.

do ^{226}Ra em águas subterrâneas varia entre 1 mBq/dm³ e 100 mBq/dm³ (Osmond; Ivanovich, 1992) a concentração de ^{222}Rn varia na larga faixa entre 1 Bq/dm³ e 1000 Bq/dm³ (Asikainen; Kahlos, 1980; Dillon et al., 1991; Zhuo et al., 2001), mas concentrações locais de mais de 10.000 Bq/dm³ têm sido relatadas na literatura (Brütsaert et al., 1981).

A concentração de atividade do ^{226}Ra e do ^{222}Rn em solução na água subterrânea dependem não só da concentração de urânio na matriz rocha do aquífero, que, em parte, reflete o tipo de rocha, mas também do estado de alteração da matriz, da superfície da rocha efetivamente exposta ao contato com a água e do estado e desequilíbrio da série do urânio no grão sólido. Por outro lado, a concentração de atividade do ^{222}Rn na água depende muito da distribuição do ^{226}Ra no interior do grão sólido. A adsorção de rádio sobre a superfície de grãos e a formação de crostas ricas em rádio aumenta em muito a transferência do radônio para a água (Tanner, 1964; 1980; Lawrence et al., 1992; Wood et al., 2004).

Em função desses fatores, a concentração de atividade de ^{222}Rn , junto com as concentrações de atividade dos diferentes isótopos do urânio e do rádio representa um indicador potencial para estudos sobre a interação rocha – água subterrânea (Osmond; Cowart, 1992). Além disso, a observação da atividade de radônio em água subterrânea e no solo encontra aplicação na prospecção de recursos minerais, radioativos ou não, no mapeamento de feições geológicas superficiais (Tanner, 1964; 1980; Fleischer, 1997).

O uso de água subterrânea para fins domésticos e econômicos tem crescido nos últimos anos no mundo todo. A possibilidade de que águas subterrâneas e minerais contenham quantidades significativas de radionuclídeos em solução, e em função disso representem algum risco de exposição à radiação, levou a um estudo sistemático da radioatividade natural dessas águas em diversos países, incluindo o Brasil (Godoy et al., 2001; Oliveira, 1993; Oliveira et al., 1994, 1998, 2001). Em particular, os aquíferos fraturados desenvolvidos em rochas ígneas e metamórficas têm recebido uma atenção especial, uma vez que elas permitem, dependendo das condições locais do aquífero, a concentração significativa de alguns radionuclídeos na água, em particular do radônio (Asikainen; Kahlos, 1978; 1980; Dillon et al., 1991; Longtin, 1988; Zhuo et al., 2001)

Esta tese se dedica à determinação da concentração de atividade de ^{226}Ra e de ^{222}Rn em águas subterrâneas extraídas de fraturas existentes nas rochas graníticas que formam o batólito de Morungaba, no leste do Estado de São Paulo, e nas rochas metamórficas encaixantes, essencialmente gnaisses e granito-gnáisses. O propósito do trabalho é determinar os teores médios desses dois radionuclídeos nas águas, verificar a flutuação desses teores em torno dos valores médios, em função do tempo e, na medida do possível, interpretar a origem dessas variações.

A tese está organizada em cinco capítulos, mais introdução e conclusão. O primeiro capítulo apresenta uma revisão geral da radioatividade em águas subterrâneas extraídas de fraturas em rochas ígneas e metamórficas. O segundo resume a geologia e o conhecimento da radioatividade das águas subterrâneas na região escolhida para o estudo. O terceiro descreve, com o máximo de detalhe disponível, os poços selecionados para a coleta de água e o procedimento de amostragem utilizado. O quarto capítulo descreve em detalhe as técnicas de medida da concentração de atividade de rádio e de radônio, todas baseadas no método de emissão do radônio, e o quinto capítulo resume e discute os resultados obtidos.

No final da tese, na forma de apêndice, são incluídos os artigos publicados durante o desenvolvimento do trabalho de pesquisa.

2. OCORRÊNCIA DE ^{222}Rn E ^{226}Ra EM ÁGUAS SUBTERRÂNEAS

Vários trabalhos tem feito o levantamento dos teores de rádio no recursos hídricos superficiais e subterrâneos dos Estados Unidos (Aieta, 1987; Hess et. al., 1985, USEPA, 1991). De modo geral as concentrações nos recursos hídricos superficiais são baixas, situando-se na faixa de 0,04 a 0,2 Bq.dm⁻³ para ^{226}Ra . Concentrações mais elevadas são encontradas nos suprimentos de água subterrânea.

A USEPA (1991), estabeleceu que a radioatividade máxima da água potável para a soma das concentrações de ^{226}Ra e ^{228}Ra (emissor beta) deve ser de 185 mBq.dm⁻³ e a atividade máxima total alfa de 555 mBq.dm⁻³, excluindo neste caso as contribuições do urânio e do radônio.

Levando em conta sua radiotoxicidade o rádio é considerado um dos mais importantes radionuclídeos de ocorrência natural. Devido sua similaridade química com o cálcio. Quando dissolvido das rochas, esse radionuclídeo torna-se parte integrante da cadeia biológica.

Entre os elementos radioativos naturais encontrados na água, o radônio é o mais abundante, sendo o isótopo ^{222}Rn o que melhor caracteriza as águas e o mais fácil de ser encontrado em conseqüência de sua meia-vida relativamente longa quando comparada com a dos outros isótopos. Por esta razão, a legislação vigente no Brasil para classificação de água mineral radioativa, Código de Águas Minerais (CODAMA), de uso comercial, faz referência unicamente as concentrações de ^{222}Rn . De acordo com o CODAMA, Diário Oficial da União (1945), as águas serão classificadas como não radioativas se apresentarem concentrações entre 134 e 672,7 Bq.dm⁻³ e fortemente radioativas para concentrações superiores a 672,7 Bq.dm⁻³.

Em decorrência de sua grande capacidade de emanção, as atividades de radônio nas águas superficiais são geralmente baixas, contrastando com águas subterrâneas que possuem concentrações bem superiores. Nos trabalhos realizados

pela USEPA no programa denominado “National Inorganic Radionuclides Survey”, (Longtin, 1990), em fontes de abastecimento de águas nos Estados Unidos, foi observava uma faixa bastante ampla para as concentrações deste radionuclídeo, variando de zero até mais de 10^3 Bq.dm^{-3}

2.1 ^{222}Rn e ^{226}Ra em águas subterrâneas

Radônio é um gás nobre radioativo, que ocorre tanto em rochas como solos, solúvel em água e produzido a partir do decaimento da ^{226}Ra . Possui tempo de meia-vida aproximado de 3,8 dias e decai por emissão de partícula alfa para produzir o ^{218}Po .

A maneira como o radônio migra da rocha para a fase líquida tem sido apresentado na literatura como ocorrendo primeiramente pelo processo de recuo alfa e posterior transporte por difusão (Sun e Semkow, 1998; Bonotto e Andrews, 1999). A migração e concentração de radônio no, embasamento, são extremamente variáveis e dependentes do tipo de rocha, das condições físicas dessa rocha (fraturas, juntas, e porosidade), geoquímica do aquífero e hidrogeologia da região (Michel, 1990).

Sabendo-se que urânio e tório são os pais dos isótopos de radônio, um conhecimento da distribuição desses elementos em diferentes embasamentos pode permitir uma indicação primária, da ordem de grandeza, das concentrações de atividade dos isótopos de radônio em águas subterrâneas. Com isso muitos trabalhos tem sido feitos para correlacionar a concentração de atividade de ^{222}Rn em águas subterrâneas com a estrutura geológica, litologia, composição química e mineralógica das rochas.

De acordo com Michel, 1990, para comparação entre as concentrações de atividade de radônio em águas subterrâneas, a litologia dos aquíferos é agrupada em dois tipos principais: cristalino e sedimentar. No tipo cristalino inclui rochas ígneas e metamórficas, o fluxo de água subterrânea ocorre através de fraturas, enquanto que no tipo sedimentar o fluxo ocorre, principalmente, através de espaços de poro interconectados e, secundariamente, por fraturas.

As mais elevadas concentrações de radônio em água subterrânea têm sido encontradas em aquíferos graníticos. Na tabela 2.1 é apresentado algumas

concentrações de atividade de ^{222}Rn , ^{226}Ra e U encontradas em águas subterrâneas extraídas de poços localizados em diferentes tipos de aquíferos.

A relação direta entre as elevadas concentrações de atividade do ^{222}Rn em águas subterrâneas e aquíferos constituído por rochas graníticas, também, são apresentadas em trabalhos com águas extraídas de poços na Georgia e Carolina do Norte, nos Estados Unidos, (Dillon et al., 1991) e na Finlândia (Asikainen & Kahlos, 1980). A forte correlação entre ^{222}Rn em águas subterrâneas e litologia do aquífero tem sido observada em diversas publicações. Michel (1990), por exemplo, faz uma revisão detalhada das elevadas concentrações de ^{222}Rn em aquíferos constituídos por rochas graníticas e apresenta uma comparação desses aquíferos com aquíferos constituídos por rochas metamórficas e sedimentares.

Tabela 2.1 - Concentração, média geométrica, de ^{222}Rn , ^{226}Ra e U, em águas subterrâneas extraídas de diferentes tipos de aquíferos (Zhuo et al., 2001).

Tipo de aquífero	^{222}Rn (kBq.m ⁻³)	^{226}Ra (kBq.m ⁻³)	U (µg.kg ⁻¹)
GRANITOS			
À duas micas	272,4 (50) ^a	19,3 (74)	1,24 (24)
Quartzo monzonítico	253,4 (6)	13,5 (8)	não determinado
Contendo potássio	177,4 (7)	19,8 (8)	não determinado
ROCHAS METAMÓRFICAS			
Meta-vulcânica	128,2 (82)	14,6 (131)	0,40 (37)
Gnaisse	77,9 (16)	10,4 (24)	não determinado
ROCHAS SEDIMENTARES			
Arcósio	133,8 (20)	10,5 (39)	não determinado
Arenito	35,7 (13)	12,8 (22)	0,46 (6)
Calcário	14,6 (5)	7,12 (7)	0,62 (4)

^a Número de amostras medidas

As altas concentrações de ^{222}Rn , milhares vezes mais elevadas, comparada com as de ^{226}Ra , é justificada devido a adsorção de rádio na superfície da rocha

matriz, em material particulado e dentro do próprio corpo rochoso constituindo assim uma fonte de ^{222}Rn para água subterrânea.

Com relação às elevadas concentrações de urânio na água subterrânea, pode-se afirmar que não contribuem diretamente para os altos níveis de ^{222}Rn , mas indicam maiores concentrações de urânio na rocha matriz que por sua vez levam a altas concentrações de ^{226}Ra .

Embora seja um gás inerte, podendo sob condições raras formar clatratos (Stein, 1983; Santikary et al., 1992) vários estudos tem sido realizados na tentativa de avaliar a influência de diversos íons na concentração de ^{222}Rn em águas subterrâneas. A presença de íons fluoreto em água, e em menor proporção íons nitrato, sob baixos valores de pH, mostrou influenciar diretamente no transporte de ^{222}Rn , com decréscimo na transferência ou exalação, quando as concentrações de íons fluoreto são incrementadas (Salih et al., 2004). Para o autor a presença de íons fluoreto não leva a formação de compostos, porém processos físicos, tais como fenômenos de microbolhas e difusão, são afetados reduzindo a mobilidade do radônio em água.

Em amostras de águas subterrâneas com valores de pH superiores a 6,5 e concentração de íons HCO_3^- , SO_4^{2-} , F^- , superiores a 0,5 meq/l, 0,1 meq/l e 0,05 meq/l, respectivamente, permitiram observar uma tendência positiva entre ^{222}Rn , ^{226}Ra e U, com uma forte correlação entre ^{222}Rn e U (Ball et al., 1991). Essas águas apresentaram, também, pequenas quantidades ou ausência de PO_4^{3-} ou Fe dissolvido.

2.2 Transporte de rádio e radônio em fraturas

2.2.1 Radônio

Uma vez formado, no retículo cristalino do mineral, o átomo de radônio sofre um deslocamento devido à energia de recuo na emissão da partícula alfa pelo átomo de rádio. Dessa forma o radônio pode ocupar posições favoráveis, dentro do mineral, à sua remoção e transporte por processos físicos diversos desde a simples difusão ao arraste do gás no meio aquoso (Tanner, 1964).

De acordo com Wood et al, 2004, o processo de sorção de ^{226}Ra na superfície da fratura mantêm um gradiente de atividade na rocha matriz, que garante um

fornecimento contínuo de ^{226}Ra para as superfícies da fratura. Com o tempo de meia-vida relativamente longo, as fraturas podem apresentar acúmulo de ^{226}Ra em suas superfícies. A característica química da água, nessa situação, pode explicar a ocorrência de elevadas concentrações de atividade de ^{222}Rn quando a rocha matriz não apresenta quantidades apreciáveis de ^{238}U .

Em aquíferos cristalinos a concentração de radônio, ao longo de uma fratura, depende da abertura da fratura, da distribuição e concentração de urânio e rádio, e do tempo de residência da água que constitui o sistema água-rocha. Folger et al (1996), cita que as grandes variações nas concentrações de radônio, 130 a 850 kBq.m⁻³, observadas em águas extraídas de poços perfurados em um mesmo granito e dentro de uma área igual a 2,5 km² tem como origem as diferenças nas aberturas das fraturas, bem como, a distribuição não homogênea de ^{226}Ra nas paredes dessas fraturas.

A distância entre o local de bombeamento de água a as interseções da fraturas, a presença de pontos de acúmulo de rádio/ou urânio dentro do raio em que o bombeamento pode influenciar, a duração e magnitude do bombeamento, também, provocam grandes variações nas concentrações de ^{222}Rn . Num conjunto de sistemas de fraturas onde o tempo de residência da água subterrânea é curto quando comparado com o tempo de meia-vida do ^{222}Rn , é observado que as variações na abertura das fraturas e distribuição de ^{226}Ra não influenciam nas concentrações de ^{222}Rn (Folger et al, 1996).

Em águas que apresentam concentrações pouco variáveis de ^{222}Rn fazer uma distinção entre os fatores que controlam a distribuição de radônio e a presença de uma fonte de ^{222}Rn só torna-se possível com base num conjunto de informações detalhadas da geometria e propriedades hidráulicas do sistema de fratura relacionado (Folger, 1996).

2.2.2 Rádio

O ^{226}Ra ocorre como traços no minerais de rochas graníticas e metamórficas, sendo a lixiviação e o recuo alfa dos elementos da série do ^{238}U , antecessores ao ^{226}Ra os principais mecanismos de transferência do rádio para o meio aquoso. Os processos que influenciam sua transferência da matriz sólida para a solução se

relacionam principalmente com a composição química da água.

Concentrações relativamente altas de ^{226}Ra foram encontradas em águas com alto teor salino. Alguns autores estudaram o efeito do aumento da concentração de sólidos dissolvidos, em particular o Ca, no nível de ^{226}Ra em águas subterrâneas. Por exemplo, Kaufman et al, (1977), mostra dados apresentam que apresentam correlação entre a concentração de ^{226}Ra e os sólidos totais dissolvidos, indicando um possível relação causa-efeito.

A presença de íons que favorecem a remoção de rádio da solução pode ser incrementada, também, devido a fatores físicos como variação de temperatura e condutividade da água. Cadigan e Felmlee, 1977, observaram que a concentração de rádio em águas subterrâneas é diminuída quando a temperatura da água aumenta. Isto ocorre porque geralmente as águas mais quentes apresentam altas concentrações de íons sulfatos. Altas concentrações de rádio podem ser encontradas em águas em contato com rochas que contém pouco urânio, mas que apresentam alta salinidade. O transporte de rádio da rocha para água dependerá do tipo de mineral, da distribuição do rádio entre os grãos do mineral, do tamanho dos grãos, da frequência de fraturas na rocha e outros parâmetros que afetam a superfície de contato com a água (Michel, 1990).

Tanner, 1964, observou que águas com elevados teores de ^{226}Ra apresentam, também, altas concentrações de ferro, cloretos, cálcio e baixas concentrações de bicarbonatos e oxigênio. Benes et al., observaram que o rádio, de modo geral, é mais móvel em aquíferos com altos teores de sólidos dissolvidos. Altas concentrações de ^{226}Ra indicam um enriquecimento do seu antecessor, o ^{238}U , na matriz do aquífero ou a presença do urânio em decorrência de acumulações secundária. Em aquíferos com alta transmissividade, o rádio pode ser transportado a considerável distância das ocorrências dos seus antecessores.

Nas águas em que o teor de sais dissolvidos é baixo e o período de contato entre a rocha e a água é curto, nas quais se pode observar desequilíbrio entre os isótopos de um mesmo elemento, os processos químicos não são suficientes para justificar a presença de rádio. Nestes casos, o mecanismo de transferência da fase sólida para a solução pode ser explicado pelo recuo do produto filho durante o decaimento.

3. CONTEXTO GEOLÓGICO E RADIOATIVIDADE DAS ÁGUAS

O embasamento exposto no leste do Estado de São Paulo é composto por rochas metamórficas, pertencentes ao cinturão Ribeira, de idade Brasileira, e variando de meta-sedimentos e rochas meta-vulcânicas a granulitos, e por um grande número de corpos plutônicos tardi-tectônicos e pós-tectônicos (figura 3.1). O embasamento é densamente fraturado e em muitos lugares aquíferos fraturados são explorados para fornecimento de água potável, tanto para uso doméstico e abastecimento de bairros e pequenas localidades, quanto para uso na agricultura e em grandes estabelecimentos comerciais e industriais.

A região, onde este trabalho foi desenvolvido, corresponde a uma pequena fração desse embasamento compreendida entre as coordenadas $46^{\circ} 30' W$ e $47^{\circ} 00' W$ e entre $22^{\circ} 30' S$ e $23^{\circ} 15' S$. Nessa região, afloram os corpos plutônicos graníticos que formam o grande batólito de Morungaba e as rochas gnáissico-migmatíticas do Complexo Amparo, que servem de rocha encaixante para esse batólito.

O afloramento do batólito de Morungaba tem uma área aproximada de 330 km^2 e uma forma grosseiramente elíptica com o eixo maior apontando na direção N-NE, sendo quase seccionado ao meio por uma exposição, em forma de lente, de rochas do embasamento metamórfico. O batólito é formado por um mosaico de rochas graníticas com idade variando entre 620 Ma e 570 Ma (Vlach, 1985, 1993). Um pequeno corpo intrusivo isolado ao sul do afloramento principal também é considerado parte do batólito de Morungaba.

Vlach (1993), reuniu as diferentes fácies que compõem o batólito em sete unidades estratigráficas distintas. As mais antigas, que afloram ao norte da lente de rochas do embasamento metamórfico, são, em ordem decrescente de idade, o Plúton Areia Branca, o Complexo Ouro Verde e o Plúton Jaguarí. O Plúton Areia Branca é formado por monzogranitos variando de cinza a rosa e com granulação entre fina e média. As rochas que compõem o Complexo Ouro Verde são graníticas porfíricas a biotita e granada. O Plúton Jaguarí é composto por granitos porfíricos contendo feldspato potássico e com coloração cinza ou rosa.

Abaixo e em frente à lente de rochas metamórficas afloram as unidades mais jovens. Corpos com forma lenticular ou irregular de biotita-monzogranitos de cor cinza, associados a corpos dioríticos e a fácies híbridas foram agrupados na unidade Ocorrências Meridionais. Monzogranitos a duas micas, leucocráticos e de coloração rosa, associados a monzogranitos e sienogranitos porfiríticos formam a unidade denominada Plúton Meridional. A unidade Plúton Oriental é formada por monzogranitos leucocráticos a biotita e muscovita e de coloração rosa. O corpo isolado ao sul do afloramento principal é composto por um leucogranito de coloração rosa, com granulação variando de fina a média e constitui a unidade Plúton Itatiba.

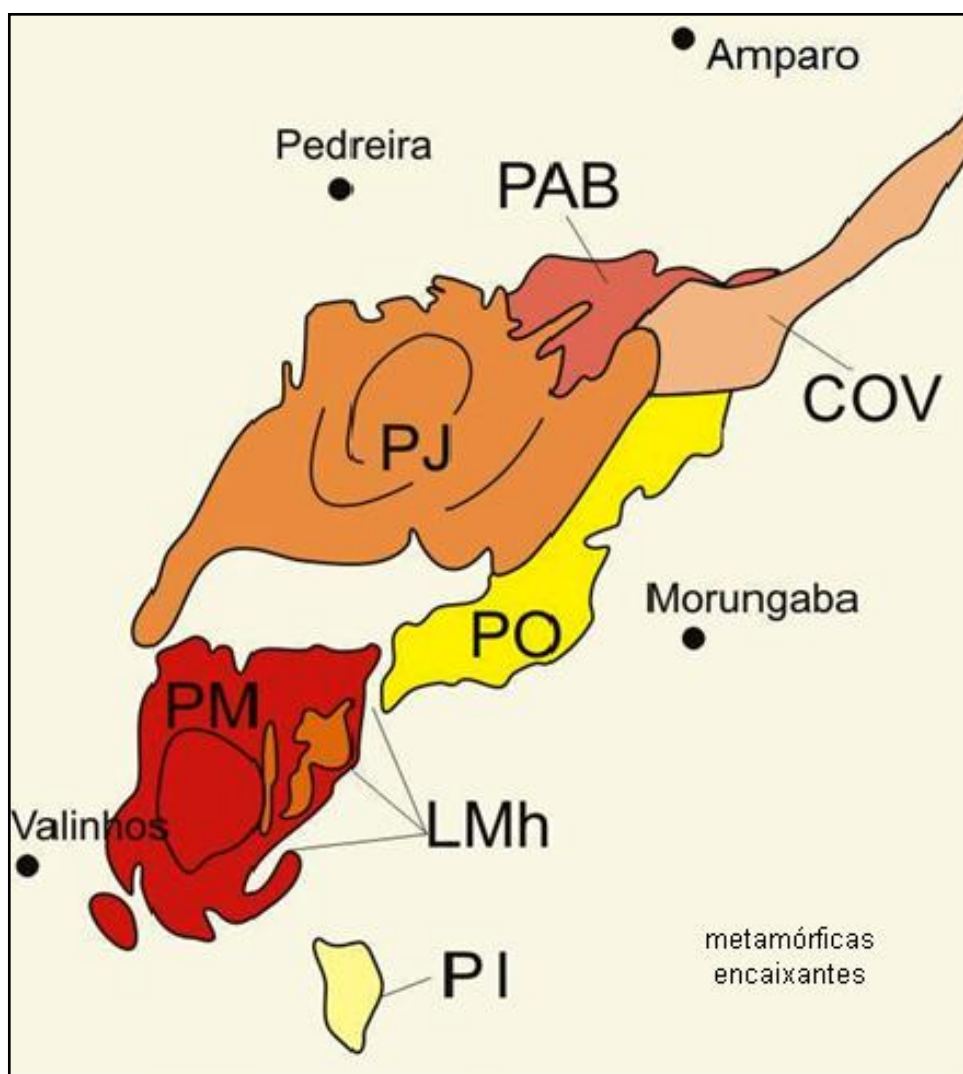


Figura 3.1 - Mapa dos corpos ígneos dos granitóides de Morungaba: COV: Complexo Ouro Verde; LMh: Ocorrências Meridionais; PAB: Plúton Areia Branca; PI: Plúton Itatiba; PJ: Plúton Jaguari; PM: Plúton Meridional; PO: Plúton Oriental (modificado de Vlach, 1993).

Os granitos porfíricos são os mais radioativos do batólito de Morungaba, apresentando concentrações de urânio entre 1 $\mu\text{g/g}$ e 9 $\mu\text{g/g}$ e concentrações de tório entre 6 $\mu\text{g/g}$ e 40 $\mu\text{g/g}$. Os seus teores de K_2O variam entre 4,7% e 6,5%. As demais rochas apresentam concentrações de urânio variando de muito baixas a 6 $\mu\text{g/g}$ e concentrações de tório entre 4 $\mu\text{g/g}$ e 29 $\mu\text{g/g}$. Os teores de K_2O dessas rochas variam entre 4,2% e 5,4% (Vlach, 1998).

As rochas predominantes no Complexo Amparo são os gnaisses de diferentes fácies que passam gradativamente para migmatitos e estruturas mais complexas. As rochas do embasamento metamórfico são parcialmente encobertas por um manto de intemperismo com espessura típica variando entre 20 m e 40 m (Cavalcante et al., 1998).

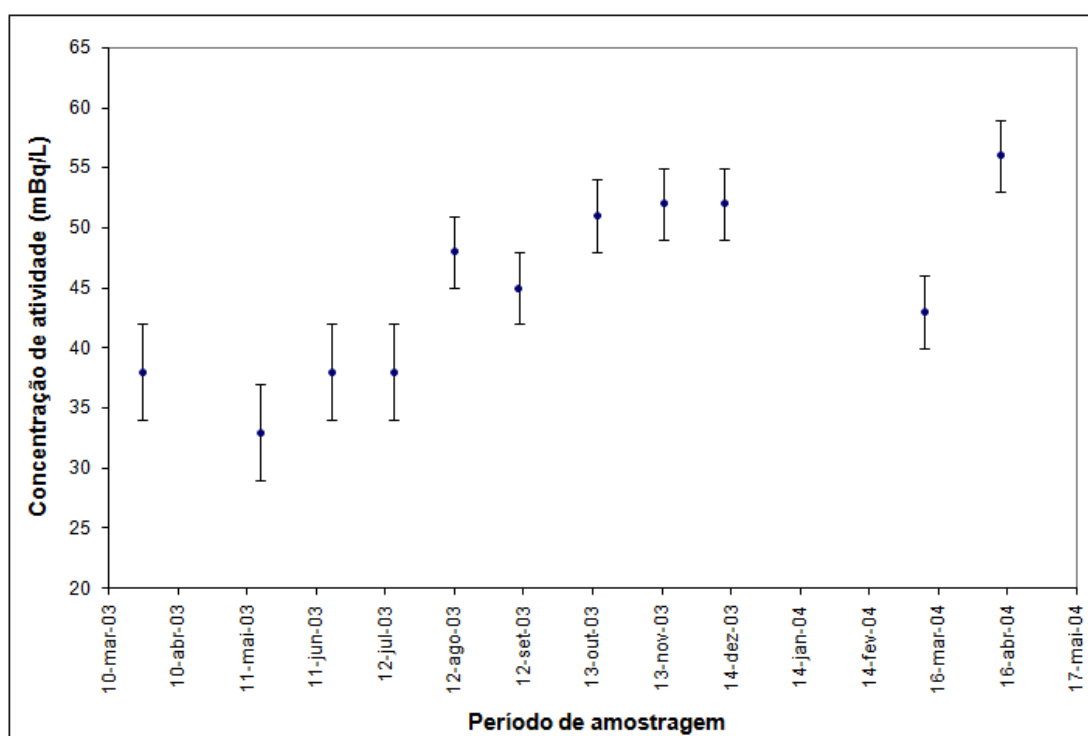


Figura 3.2 - Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra , dissolvido em solução, como função do tempo entre março de 2003 e abril de 2004 (Lucas e Ribeiro, 2006).

São poucas as informações encontradas na literatura sobre a radioatividade das rochas metamórficas imediatamente vizinhas ao batólito de Morungaba. Andrade (1998), relatou, para seixos de meta conglomerados, gnaisses, gnaisses migmatíticos e migmatitos provenientes do cinturão Ribeira no leste do Estado de São Paulo, concentrações de urânio variando entre 1,3 $\mu\text{g/g}$ e 7,5 $\mu\text{g/g}$, concentrações

de tório variando entre 5,6 $\mu\text{g/g}$ e 46,8 $\mu\text{g/g}$ e concentrações de potássio variando entre 0,6 % e 4,8 %.

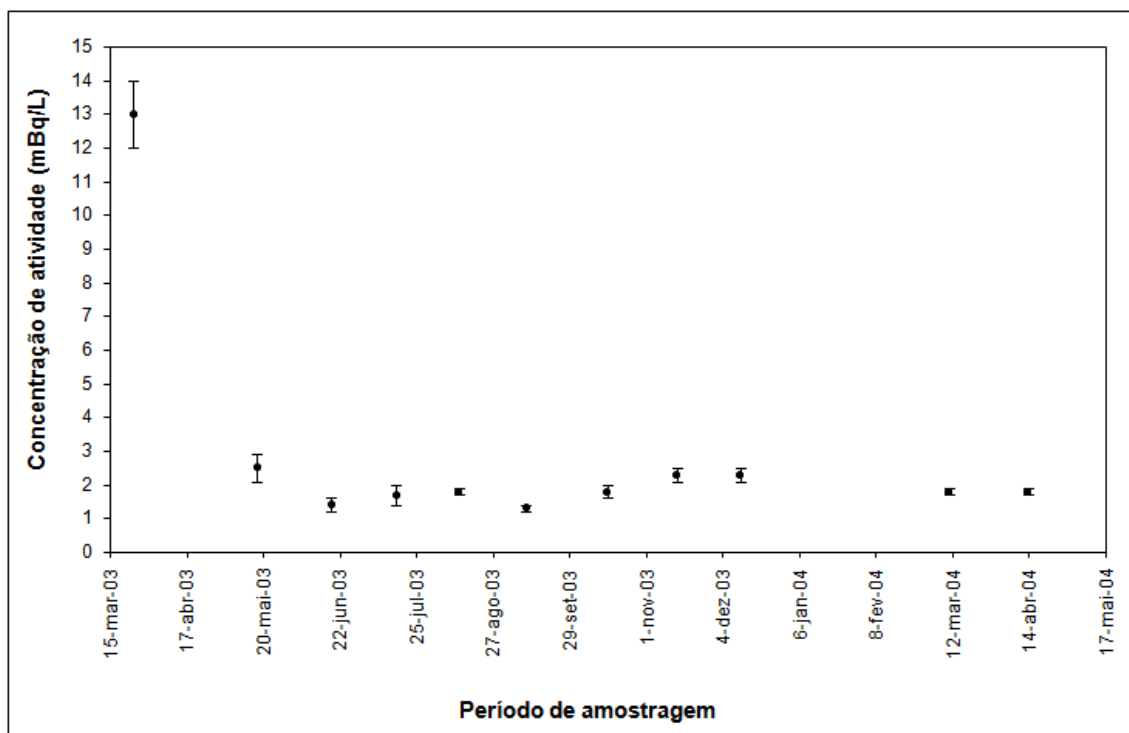


Figura 3.3 - Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra , em material particulado, como função do tempo entre março de 2003 e abril de 2004 (Lucas e Ribeiro, 2006).

A radioatividade das águas subterrâneas na região do batólito de Morungaba é ainda pouco conhecida. Lucas e Ribeiro (2006), mediram a atividade do ^{226}Ra , dissolvido e associado ao material em suspensão, de águas extraídas de dois poços perfurados no Plúton Meridional e separados por uma distância de aproximadamente 930 m. Amostras de água foram coletadas com uma periodicidade aproximadamente mensal. A figura 3.2 apresenta a variação da concentração de atividade do ^{226}Ra como função do tempo entre março de 2003 e abril de 2004. A figura 3.3 apresenta a variação da atividade do ^{226}Ra no material em suspensão em um litro das mesmas amostras de água.

Os valores médios de concentração de atividade obtidos foram de $(44,9 \pm 7,5)$ mBq/dm^3 , no poço correspondente à figura 3.2 e de $(52,6 \pm 8,6)$ mBq/dm^3 no segundo poço. Aparentemente, não há uma dependência sazonal clara da concentração de ^{226}Ra . As atividades de ^{226}Ra associadas ao material em

suspensão em um litro de água variaram 0,8 mBq e 13 mBq, no caso do poço correspondente à figura 3.3, e entre 0,6 mBq e 4,9 mBq, no caso do segundo poço.

Reyes e Marques (2008), mediram a atividade de ^{238}U , ^{234}U e de ^{226}Ra e ^{228}Ra em amostras de água dos mesmos poços analisados por Lucas e Ribeiro (2006) e coletadas na mesma ocasião. Os dados mostram que a série do urânio se apresenta em desequilíbrio radioativo. Variações na concentração de ^{234}U e de ^{238}U e na razão de atividades $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ sugerem a existência de uma dependência dessas observações com a precipitação local. As concentrações de ^{226}Ra e ^{228}Ra parecem não apresentar uma dependência sazonal clara. Embora os dois poços analisados sejam próximos, as razões $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{226}\text{Ra}/^{234}\text{U}$ e $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ sugerem que a interação rocha água é diferente em cada poço.

Lucas e Ribeiro (2007), e Lucas, Chaves e Ribeiro (2009), mediram a atividade de ^{222}Rn em amostras de águas subterrâneas extraídas de poços localizados na região de afloramento das rochas encaixantes. Lucas e Ribeiro (2007), apresentam a concentração de atividade do isótopo de radônio, ^{222}Rn , em três poços: dois localizados na cidade de Itatiba e um no município de Campinas entre a localidade de Souza e a cidade de Pedreira. O primeiro poço está localizado no centro da cidade de Itatiba corta essencialmente um granito porfiróide com pórfiros de feldspato potássico. O granito não aflora no local e está encoberto por uma camada de aproximadamente 30 metros de solo e o segundo poço está localizado nos limites da cidade de Itatiba e corta um granito gnaisse, também encoberto por uma camada de solo. O terceiro poço está localizado na borda noroeste do batólito, no contato do Plúton Jaguari com o embasamento metamórfico e corta um gnaisse micáceo melanocrático. Os valores médios de concentração de atividade obtidos foram de $(76 \pm 7) \text{ Bq/dm}^3$, no primeiro poço, de $(26 \pm 3) \text{ Bq/dm}^3$, no segundo e de $(39 \pm 4) \text{ Bq/dm}^3$, no terceiro poço. Embora os valores médios sejam muito diferentes e, em parte, devidos ao tipo de rocha atravessada, todos apresentam uma variação temporal comum que foi interpretada como sendo associada a variações sazonais de precipitação na região.

Lucas, Chaves e Ribeiro (2009), apresentam concentrações de atividade de ^{222}Rn em dois poços localizados na zona urbana da cidade de Amparo, ao norte do batólito de Morungaba. Um dos poços atravessa gnaisse e biotita gnaisse e

apresenta uma concentração de atividade média de ^{222}Rn de 1275 Bq/dm^3 . O segundo poço atravessa um granito-gnaiss e apresenta uma concentração de atividade média de radônio de 374 Bq/dm^3 . Ambos apresentam a mesma dependência sazonal observada nos poços de Campinas e Itatiba.

4. LOCALIZAÇÃO E DESCRIÇÃO DOS POÇOS PARA COLETA DE AMOSTRAS E PROCEDIMENTOS DE AMOSTRAGEM

4.1 Determinação das concentrações de atividade de ^{226}Ra

Amostras de água subterrânea, para determinação de concentração de atividade de ^{226}Ra e de ^{222}Rn foram coletadas em cinco poços distribuídos na área de estudo definida no capítulo 2. A figura 4.1 mostra a distribuição dos poços na área de interesse e a tabela 4.1, lista as suas coordenadas UTM, zona 23 S. meridiano central 45°.

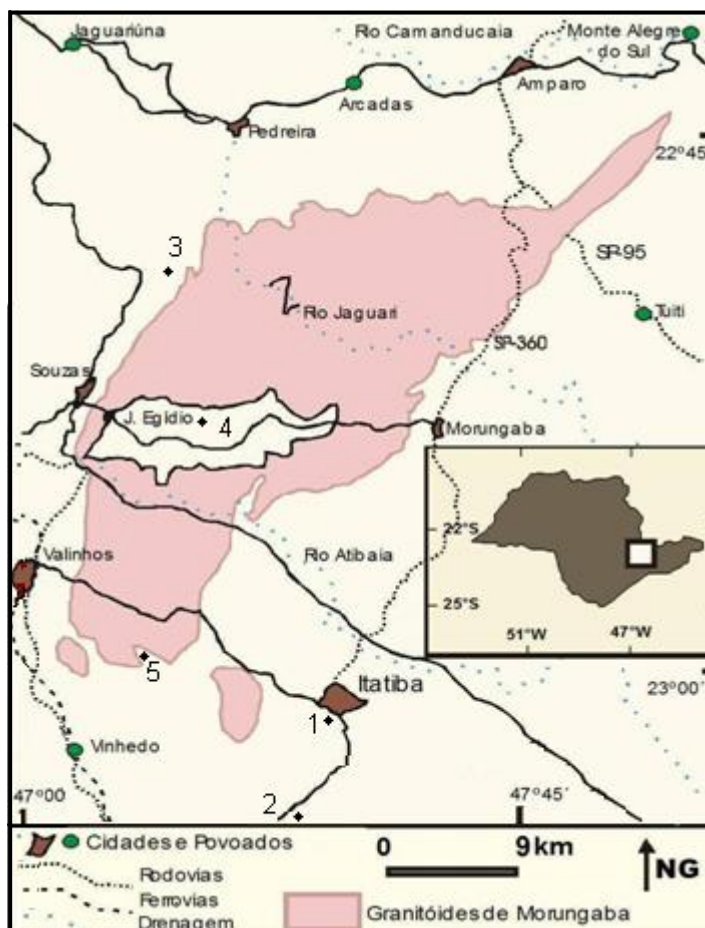


Figura 4.1- Mapa de localização dos granitóides de Morungaba e sua localização (SP). As referências 1, 2, 3, 4 e 5 indicadas no mapa representam os pontos de localização dos poços.

A tabela 4.1 apresenta também a unidade geológica sobre a qual o poço foi perfurado, tal como definido na figura 3.1, capítulo 3, a sua profundidade e os resultados dos testes de vazão realizados após a conclusão dos poços. Os poços estão distribuídos em torno do batólito de Morungaba.

Tabela 4.1 - Dados gerais dos poços utilizados para coleta de água. Os valores de vazão correspondem aos testes de bombeamento após a conclusão dos poços.

Poço	Unidade geológica	Coordenadas UTM (km)	Profundidade (m)	Vazão m ³ /hora
1	Complexo Amparo	7453,68 N / 310,40 W	155	Não determinado
2	Complexo Amparo	7450, 13 N / 309,07 W	52	2,1
3	Complexo Amparo	7475,42 N / 302,34 W	54	25,5
4	Lente gnáissica, Complexo Amparo	7.468,45 N / 304,59 W	120	7,2
5	Plúton Meridional	7.455,00 N / 302,00 W	120	9,5

*Valor aproximado

A distância máxima entre os poços é de 35 km. Três poços foram perfurados sobre as rochas do Complexo Amparo, um poço foi perfurado na lente gnáissica de Joaquim Egidio e outro sobre os granitos que formam o Plúton Meridional.

O poço número 1 foi perfurado para fornecer água a um grande estabelecimento comercial na cidade de Itatiba. O poço atravessa 10 metros de solo argilo-arenoso, 21 metros de granito alterado rosa-esbranquiçado e 111 metros de um granito profiróide, com pórfiros de feldspato potássico (figura 4.2). Ainda na cidade de Itatiba, afastado do centro e localizado no Bairro Itapema, foi perfurado o poço número 2 para fornecer água a um estabelecimento industrial. O poço (figura 4.3) atravessa 1,2 metro de solo preto contendo matéria orgânica, 13,10 metros de solo alterado com coloração amarelo avermelhada, 4,7 metros de rocha alterada contendo quartzo feldspato e muita mica e 33 metros de um granito-gnáisse cinza.

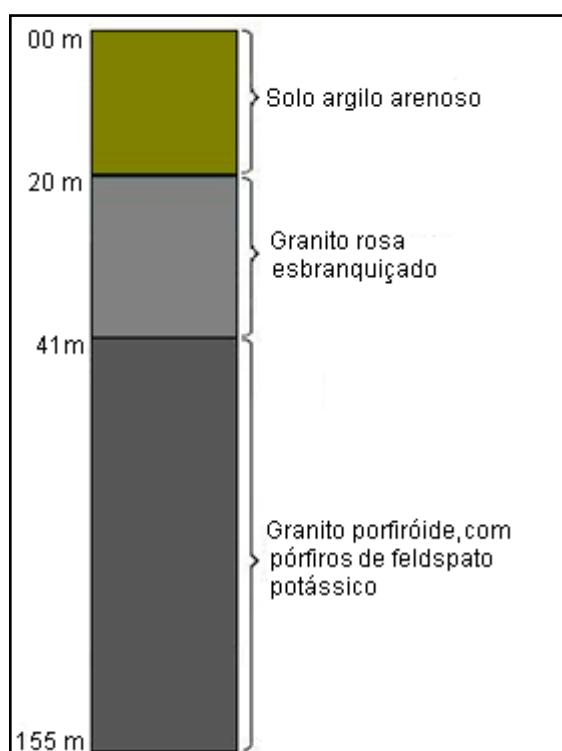


Figura 4.2 – Perfil litológico do poço 1

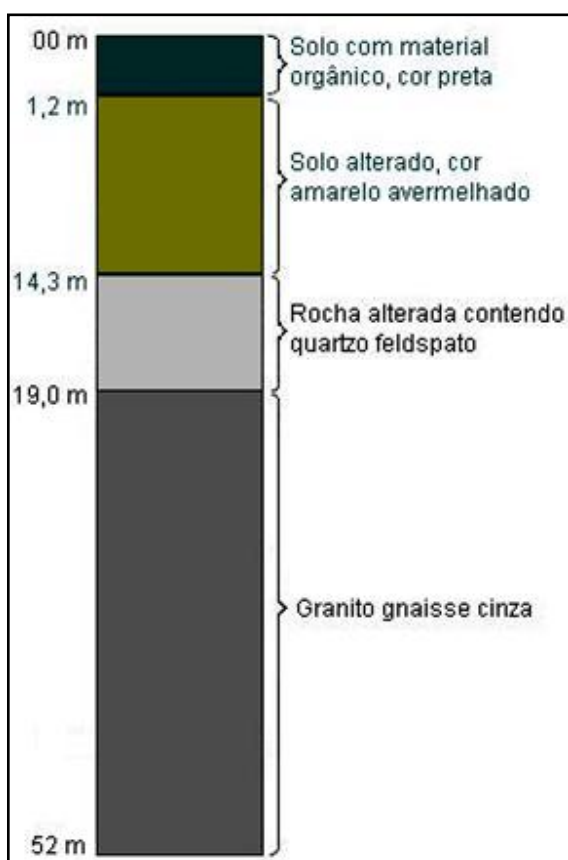


Figura 4.3 – Perfil litológico do poço 2

O poço número 3 foi perfurado na zona rural, entre a localidade de Sousas e a cidade de Pedreira, para fornecimento de água a uma pequena propriedade rural. A figura 4.4 apresenta o perfil geológico desse poço. O poço atravessa 17 metros de solo e manto de alteração, 7 metros de rocha semi-alterada e 30 metros de um gnaissé melanocrático, micáceo de cor cinza escura. Esse gnaissé apresenta fraturas nas profundidades de 27 metros, 29 metros, 30 metros e 42 metros.

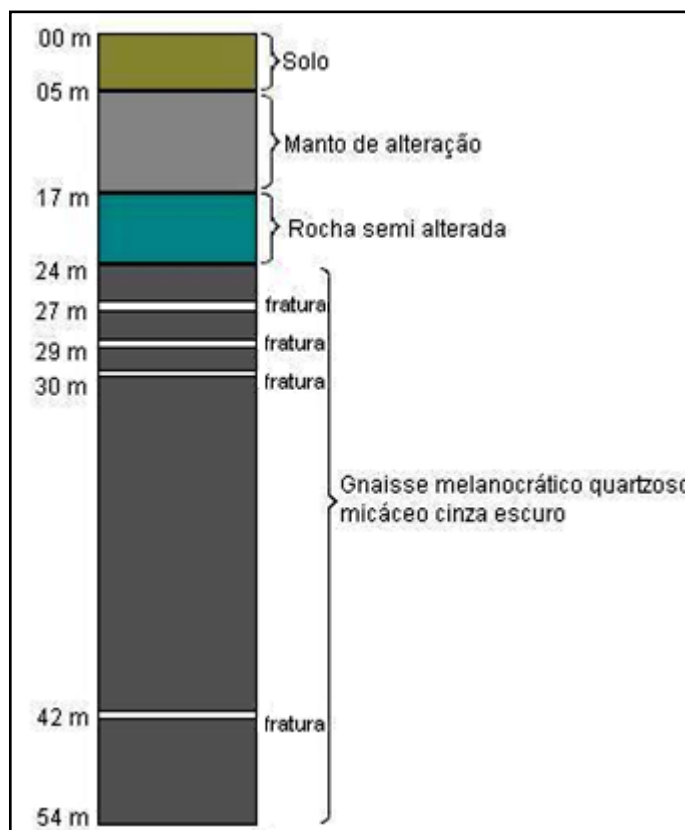


Figura 4.4 – Perfil litológico do poço 3

O poço número 4 foi perfurado na zona rural da localidade de Joaquim Egídio. A figura 4.5 apresenta a coluna geológica do poço, que atravessa 4 metros de argila siltosa, 2 metros de um matacão de granito cinza, 8 metros de uma argila arenosa e orgânica com fragmentos de rocha alterada, 2 metros de granito alterado e 104 metros de granito não alterado, compacto, variando de leucocrático a mesocrático. O poço fornece água para uma pequena propriedade rural.

O último poço, figura 4.6, foi perfurado no bairro São Bento, na cidade de Valinhos. A figura 3.6 apresenta o perfil geológico do poço. O poço atravessa 6 metros de solo, 5 metros de rocha alterada, 5 metros de um granito rosa sem

alteração, 5 metros de rocha, semi alterada, seis metros de rocha fraturada e 90 metros de granito rosa, sem sinal de alteração. O poço fornece água para população rural.



Figura 4.5 – Perfil litológico do poço 4



Figura 4.6 – Perfil litológico do poço 5

A água de cada um dos cinco poços foi coletada com uma periodicidade

aproximadamente mensal durante o período de um ano. Os poços 3, 4 e 5, que foram amostrados entre julho de 2005 e agosto de 2006 e os poços 1 e 2, que foram amostrados entre abril de 2007 e março de 2008. Amostras para medida de concentração de atividade de rádio e de radônio foram coletadas, sempre que possível, na mesma ocasião. Em alguns casos, no entanto, amostras de rádio ou de radônio foram coletas isoladamente.

4.2 Coleta de água e extração do radônio dissolvido

O processo de coleta de água e extração do radônio dissolvido foi diferente para as amostras coletadas entre julho de 2005 e agosto de 2006 e para as amostras coletadas entre abril de 2007 e março de 2008.

4.2.1 Procedimento adotado às coletas de água entre julho de 2005 e agosto de 2006

Amostras de água foram coletadas em frascos especialmente projetados para evitar o contato da água com a atmosfera (figura 4.7).



Figura 4.7 – Frasco utilizado na coleta água para extração de gás radônio

Esses frascos têm um volume aproximado de 3 dm³ e possuem uma tampa de nylon que veda completamente o frasco. A tampa possui uma admissão,

controlada por torneira tipo esfera e projetada para reter gás, que dirige o fluxo de água até o fundo do frasco através de uma mangueira plástica. A tampa possui, também, uma exaustão, controlado pelo mesmo tipo de torneira, que, quando aberta, permite o fluxo de água através do volume do frasco, e o descarte de água quando o frasco fica completamente preenchido. A tampa possui ainda uma conexão, do tipo de engate e vedado para a troca de gás com a atmosfera, que permite a introdução, no frasco de amostra, de um fluxo de gás de arraste (ver o procedimento de extração de radônio no capítulo 5). O engate é ligado, por uma mangueira plástica a um tubo de vidro, que termina em uma ponta porosa e permeável a gás, próximo ao fundo do frasco. Quando aberto para a atmosfera, essa conexão auxilia o fluxo de água através do frasco e a sua drenagem.

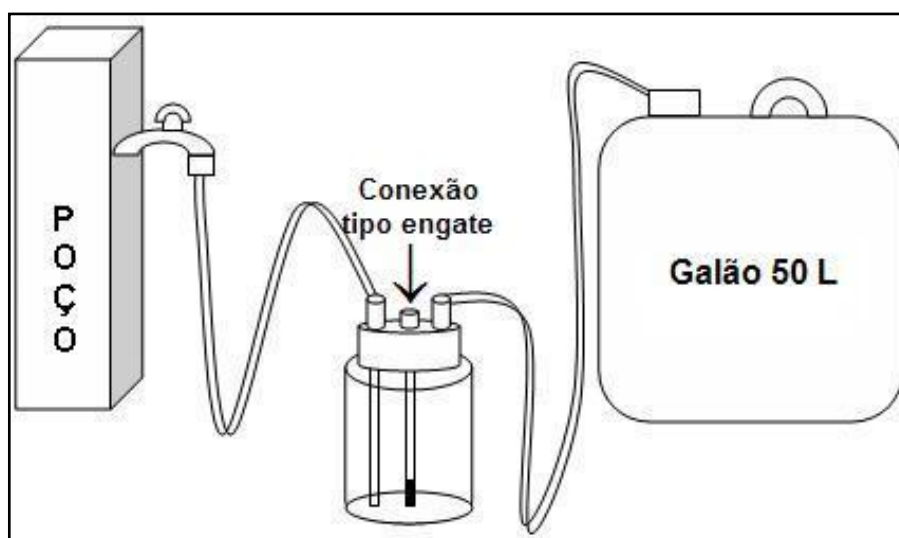


Figura 4.8 – Representação esquemática das coletas realizadas no campo

O processo de coleta de amostra é feito conectando-se a torneira de admissão do frasco de amostragem ao dreno do poço através de uma mangueira plástica. A água proveniente do poço é dirigida ao fundo do frasco, flui através do seu volume e extravasa através da torneira de exaustão e da conexão do tipo engate, que são mantidas abertas para atmosfera. Na torneira de exaustão é adaptada uma mangueira plástica para aproveitar o fluxo excedente na coleta de amostras para dosagem de rádio. Nessa fase da amostragem, é tomado o cuidado para garantir que todo o ar contido nas mangueiras de conexão e no frasco de amostragem seja removido. A figura 4.8 representa o esquema de coleta realizado.

Após, pelo menos, quinze minutos de fluxo de água, a conexão tipo engate é

fechada e, pelo menos, mais 50 dm³ de água é feito fluir através do frasco de amostragem. Depois desse período, as torneiras de admissão e exaustão são fechadas, encerrando no frasco uma amostra de aproximadamente 3 dm³, representativa da água do poço, e que não foi exposta à atmosfera. Três alíquotas independentes são coletadas durante a amostragem feita em cada poço. O momento em que o frasco de coleta de amostra é lacrado é anotado e as amostras são levadas ao laboratório para medida da concentração de atividade de radônio.

4.2.2 Procedimento adotado às coletas de água entre abril de 2007 e março de 2008

O procedimento descrito acima, embora permita a coleta de amostras representativas da água subterrânea dos locais de amostragem, apresenta dois inconvenientes. O primeiro é a necessidade de transporte dos frascos de amostragem para o laboratório, onde a extração do radônio dissolvido é realizada. A extração de radônio no laboratório é demorada e atrasa as determinações de rádio que têm que ser feitas, também, em laboratório. O segundo problema reside no fato dos frascos de amostragem freqüentemente quebrarem devido à pressão gerada pela bomba do poço.

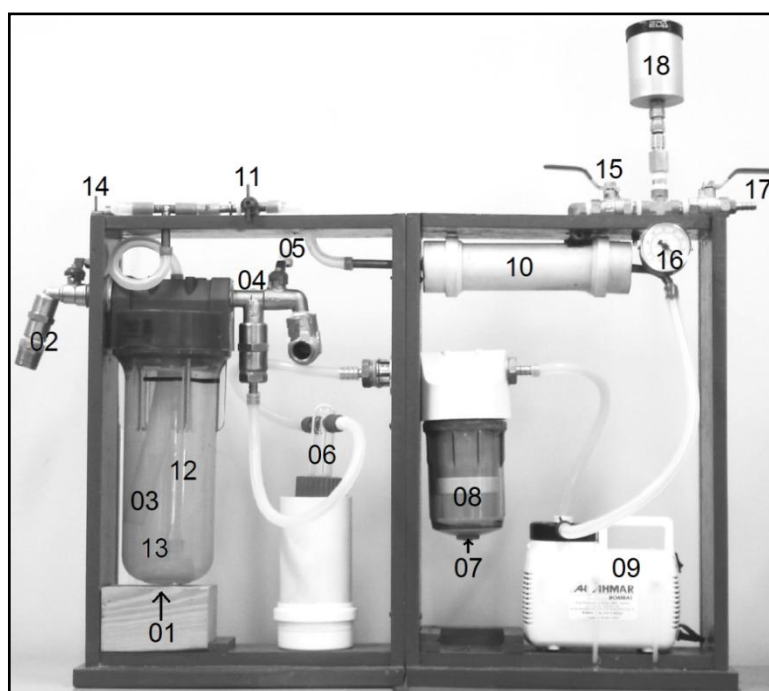


Figura 4.9 – Linha portátil de extração de gás radônio dissolvido em águas subterrâneas

Um equipamento portátil para coleta de amostras de água e extração de radônio dissolvido no campo foi construído para contornar os problemas descritos acima. O equipamento construído foi descrito em detalhe em Oliveira (2008), e em Lucas, Chaves e Ribeiro (2009). A figura 4.9 apresenta o equipamento construído e identifica seus componentes principais.

Em resumo, o equipamento possui um frasco de amostragem (1) com um volume interno de $1,34 \text{ dm}^3$. O frasco tem uma torneira de admissão (2) que pode ser conectada ao dreno do poço através de uma mangueira de plástico. Durante a coleta, a água proveniente do poço é dirigida ao fundo do frasco por um tubo plástico (3). Na parte superior do frasco de amostragem existe uma exaustão controlada por uma torneira (5) que, quando aberta, permite o fluxo de água e o extravasamento do excesso de água depois do completo enchimento do volume. O frasco de amostragem também é ligado a um retentor de água (6) através da torneira (4). A função do retentor, que consiste de um lavador de gases limpo e vazio, de água é impedir que parte da água coletada atinja setores do equipamento que devem permanecer secos durante a sua operação.

A entrada do retentor de água dirige um eventual fluxo de água para o seu fundo e a sua saída, localizada na parte superior do frasco, é conectada a um retentor de umidade (7). O retentor de umidade consiste em um frasco contendo uma coluna de sílica gel (8) granulada e não compactada, com aproximadamente 10 cm de altura e 5 cm de diâmetro. A saída do retentor de umidade é ligada à admissão de uma bomba de circulação de ar, do tipo membrana vibrante (9) e isolada da atmosfera. A exaustão da bomba é ligada à entrada de uma câmara de retenção de gás (10), composta por um tubo de PVC limpo, com 22 cm de comprimento e 5 cm de diâmetro. A outra extremidade dessa câmara é ligada ao frasco de amostragem através de um tubo de borracha de silicone. O fluxo de gás através dessa mangueira é controlado por uma torneira (11). Ligado a essa torneira existe um tubo de vidro (12), que dirige o fluxo de água ao fundo do frasco de amostragem. A extremidade inferior termina em uma ponta porosa (13). A extremidade superior do tubo de vidro pode ser exposta à atmosfera através da torneira (14).

Uma amostra do gás contido na câmara de retenção pode ser extraída através da torneira (15). A essa torneira é ligado um manômetro (16), a conexão,

controlada pela torneira (17), para uma bomba manual de vácuo, e o encaixe para o detector de radiação (18).

A operação do equipamento de coleta é simples. Com as torneiras (2) e (5) abertas e com as torneiras (4), (11) e (14) fechadas, o fluxo de água proveniente do poço atravessa o volume do frasco de amostragem (1) por um período mínimo de 15 minutos. Todo cuidado é tomado para garantir que todo o ar contido nas mangueiras de conexão e no frasco de amostragem seja removido. Em seqüência, mais 50 dm³ de água são forçados a fluir através do volume do frasco de amostragem. As torneiras (2) e (5) são então fechadas isolando uma amostra de água subterrânea representativa do local de amostragem e que não teve contato com a atmosfera.

Com as torneiras (2), (5), (14) e (15) fechadas e com as torneiras (4) e (11) abertas, a bomba de circulação é ligada forçando o ar confinado na linha a circular pelo equipamento por cinco minutos. O ar borbulha na água contida no frasco de amostragem produzindo uma agitação significativa. Uma vez que o frasco de amostragem está, inicialmente, completamente preenchido de água, uma parte desse volume é expelido para dentro do retentor de água. O fluxo de ar perde a maior parte da sua umidade na coluna de sílica gel, atravessa a câmara de retenção de gases e retorna ao frasco de amostragem. Nesse processo, uma fração importante do radônio inicialmente dissolvido na água é transferida para o ar encerrado no equipamento. Após cinco minutos, a bomba de circulação é desligada e a torneira (11) fechada.

Um detector tipo célula de Lucas é conectado no encaixe 16. Com a torneira (15) fechada e com a torneira (17) aberta, a pressão no detector e no pequeno espaço limitado pelas torneiras é abaixada até 120 mm de Hg. A torneira (17) é fechada e a torneira (15) é aberta lentamente para transferir uma parte do ar contido no equipamento para o detector. A pressão sobe em alguns segundos e, como o sistema é fechado, a pressão final é pouco inferior à pressão atmosférica. A torneira (14) é aberta e ar atmosférico borbulha na amostra e empurra o ar contido no sistema para dentro do detector, equilibrando a pressão do equipamento com a atmosférica. O comprimento longo da linha, de aproximadamente 4 metros e o volume da linha, da ordem de 50 vezes o volume do detector, garante que a concentração de radônio na amostra não é significativamente afetada pelo ar atmosférico.

5. MATERIAIS E MÉTODOS

5.1.1 Determinação das concentrações de atividade de ^{226}Ra

A determinação da concentração de atividade do ^{226}Ra foi realizada utilizando-se a técnica da emanção do gás radônio (Lucas et al., 1990). Existem publicados na literatura, diversos arranjos experimentais que utilizam essa técnica. No desenvolvimento deste trabalho, utilizou-se o arranjo e o procedimento experimental descrito em detalhe em Lucas (2004) e Lucas e Ribeiro (2006), com alterações nos procedimentos de calibração. Um breve resumo do arranjo e do procedimento experimental é apresentado no que segue.

5.1.2 Procedimento radioquímico para extração de ^{226}Ra

O procedimento radioquímico adotado nas análises de ^{226}Ra corresponde, com pequenas modificações aos procedimentos propostos por Jing (1989) e Kim et al., (2001). Em relação ao procedimento descrito por Lucas (2004) e Lucas e Ribeiro (2006), as únicas diferenças são as quantidades de ácido utilizadas, que foram significativamente reduzidas.



Figura 5.1 – Conjunto de elementos pertencentes ao sistema de filtração

Cada alíquota de água destinada à determinação da concentração de atividade de ^{226}Ra tem um volume de 20 dm^3 . A alíquota coletada é previamente filtrada durante o procedimento de amostragem. O sistema de filtragem, apresentado na figura 5.1, foi construído com conexões utilizadas na instalação de sistemas hidráulicos residenciais. Esse sistema dispõe, em seqüência na direção do fluxo de água, um filtro de microfibras de vidro, com abertura de poro variando entre $0,8\text{ }\mu\text{m}$ a $8\text{ }\mu\text{m}$, e um filtro de membrana em éster de celulose com $0,45\text{ }\mu\text{m}^2$ de abertura de poro. A filtração é feita utilizando a pressão existente na boca do poço.

Às amostras obtidas, após filtração, que não são imediatamente processadas no laboratório, é adicionado 40 cm^3 de HNO_3 , obtendo-se, dessa forma, uma solução com pH inferior a 2. A alta concentração de íons hidrogênio reduz a adsorção dos diversos radionuclídeos nas paredes do recipiente. De uma forma geral, amostras preservadas dessa maneira permanecem estáveis por vários meses (Smithson, 1990). No caso das amostras aciduladas, o processamento radioquímico foi realizado, no máximo, duas semanas após a filtração.

A precipitação do rádio, contido nas amostras de 20 dm^3 , é realizada adicionando-se, sob agitação constante, 40 cm^3 de carregador de bário ($20\text{ mg Ba}^{2+}/\text{cm}^3$) e 100 cm^3 de HNO_3 . Em seguida adiciona-se, lentamente e sob agitação vigorosa, 50 cm^3 de H_2SO_4 . A agitação é mantida por, aproximadamente, 10 minutos e o precipitado recém formado deixado em repouso por cerca de 12 horas. Passado o período de repouso, fazendo uso de uma bomba de sucção e da aparelhagem apresentada na figura 5.2a, o precipitado formado, $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$, é retido em um elemento filtrante de filtração rápida, com porosidade de $7,5\text{ }\mu\text{m}$ (figura 5.2b).

O precipitado, recolhido no filtro, é transferido para um béquer de 1000 cm^3 , tomando-se o cuidado em lavar o papel de filtro utilizado com $\text{EDTA } 0,25\text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$. A esse precipitado é adicionado 150 cm^3 de $\text{EDTA } 0,25\text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$, $50\text{ cm}^3\text{ NH}_4\text{OH}$ e,

² Por convenção geoquímica, considera-se que a fração dissolvida corresponda a todo material que não fica retido em um filtro de membrana de $0,45\text{ }\mu\text{m}$ de poro (Benes, 1990).

novamente, EDTA $0,25 \text{ mol. dm}^{-3}$ até ser atingido volume final igual a 500 cm^3 . Em seguida o béquer é coberto com um vidro de relógio e aquecido até completa dissolução do precipitado.

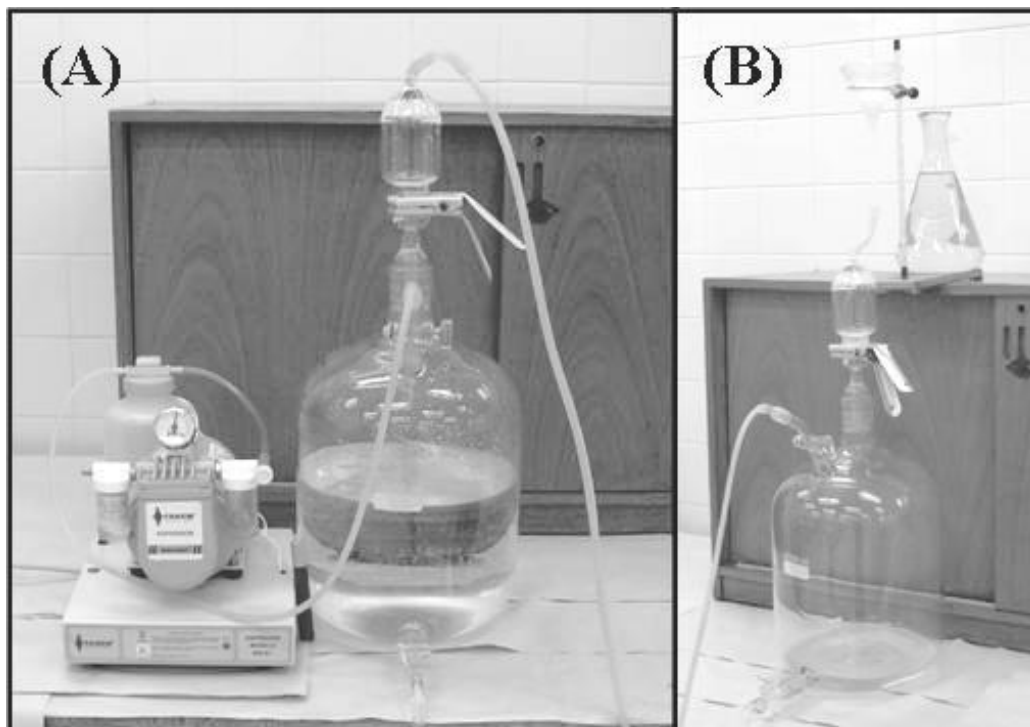


Figura 5.2 - **(A)** Aparelhagem utilizada na filtração e remoção do sobrenadante. **(B)** equipamento adaptado para coletar o precipitado formado.

Após dissolução do Ba(Ra)SO_4 a solução é deixada resfriar até a temperatura ambiente e transferida para um frasco de acumulação de radônio (figura 5.3). Uma vez presente no interior do frasco de acumulação, um fluxo de argônio, com vazão de $1 \text{ dm}^3/\text{min}$, é borbulhado na solução por 10 minutos.

O volume total do gás de arraste utilizado corresponde a vinte vezes o volume da solução. O fluxo de argônio é relativamente baixo para permitir uma boa transferência de radônio da solução para o gás de arraste, ao mesmo tempo em que é alto o suficiente para agitar a solução. Nessas condições, quase todo o radônio e outros gases dissolvidos são removidos da fase aquosa. Por outro lado, a atmosfera no interior do frasco de emanção passa a ser essencialmente composta por argônio e por quantidades muito pequenas de outros gases.

O frasco de acumulação é, então, fechado e mantido em repouso por um período mínimo de oito dias. Durante esse período a atividade de radônio cresce como consequência da desintegração do rádio em solução e ao fim dos oito dias a atividade do ^{222}Rn no interior do frasco de acumulação corresponde a 78% da atividade do ^{226}Ra .



Figura 5.3 – Frasco de acumulação

Assumindo que todo o radônio inicialmente presente na solução de EDTA tenha sido removido, o crescimento da atividade do radônio ($A(^{222}\text{Rn})$), em consequência da desintegração do ^{226}Ra em solução é:

$$A(^{222}\text{Rn}) = \frac{\lambda(^{222}\text{Rn})}{\lambda(^{222}\text{Rn}) - \lambda(^{226}\text{Ra})} A(^{226}\text{Ra})(1 - e^{-\lambda(^{222}\text{Rn})t}) \quad (5.1)$$

onde:

t - é o tempo de acumulação; $A(^{226}\text{Ra})$ - é a atividade do ^{226}Ra na solução; $\lambda(^{222}\text{Rn})$ e $\lambda(^{226}\text{Ra})$ - são as constantes de decaimento dos isótopos do radônio e do rádio, respectivamente.

A etapa seguinte na determinação da concentração de atividade de ^{226}Ra , dissolvido em solução, consiste na extração e transferência do gás radônio para o sistema de detecção. Tanto as etapas, agora citadas, quanto às de limpeza do arranjo experimental e do sistema de detecção são descritos em Lucas (2004) e em Lucas e Ribeiro (2006).

5.1.3 Calibração do sistema de extração de ^{222}Rn

A calibração do sistema de extração (figura 5.4) e dos detectores foi realizada em uma única etapa. Nessa calibração seis alíquotas, com $0,5\text{ dm}^3$ cada, de HNO_3 $0,5\text{ mol}\cdot\text{dm}^{-3}$, foram contaminadas com diferentes massas de solução padrão de ^{226}Ra com concentração de atividade de $(0,321\pm 0,012)\text{ Bq/g}$ de solução. As massas de solução padrão utilizadas no procedimento de calibração variaram de $(0,1550 \pm 0,0001)\text{ g}$ a $(9,3346 \pm 0,0001)\text{ g}$ de solução padrão.



Figura 5.4 – Arranjo experimental (linha de extração e unidade aquisitora de dados)

As soluções contendo ^{226}Ra foram transferidas para o frasco de acumulação e armazenadas por um período mínimo de 8 dias. Após esse intervalo de tempo, as

amostras foram submetidas ao procedimento de extração e transferência do ^{222}Rn para o detector do tipo célula de Lucas (figura 5.5).

Neste trabalho foram utilizadas seis células de Lucas. O conjunto de seis pares formados pela concentração de atividade de ^{226}Ra contido em cada solução de calibração e a atividade alfa correspondente foi utilizado para construir uma curva de calibração para cada detector.



Figura 5.5 – Célula de Lucas

As figuras 5.6 e 5.7 apresentam as curvas de calibração obtidas em dois detectores, detector 1801 e 1802, utilizados nas determinações de ^{226}Ra , bem como seus correspondentes valores de χ^2 amostral e de coeficiente de correlação linear r .

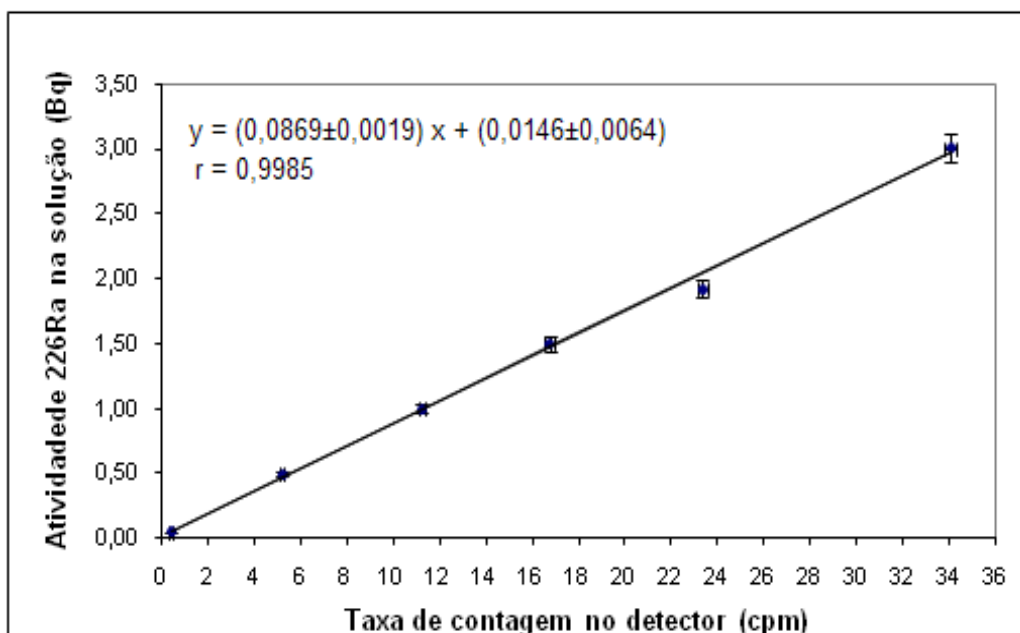


Figura 5.6 – Curva de calibração do detector 1801

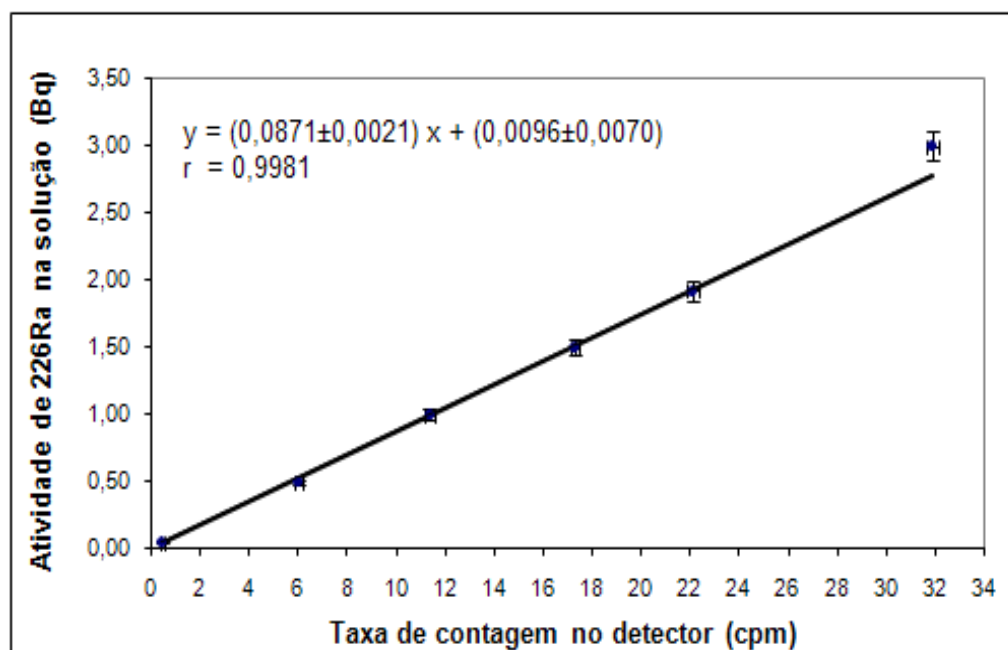


Figura 5.7 – Curva de calibração do detector 1804

5.1.4 Contagem de fundo e limites de detecção

Para estimar a contagem de fundo total que afeta as medidas de atividade de ^{226}Ra , alíquotas de água destilada foram encerradas dentro de frascos de acumulação e submetidas a todo o procedimento de extração e determinação da concentração de atividade. Com os resultados obtidos, a avaliação do limites de detecção e nível crítico, tal como definidos por Currie (1968), permitiram observar que o ruído de fundo dos detectores se confunde com as taxas de contagens obtidas com as soluções estéreis. Com isso adotou-se como taxa de contagem de fundo o próprio fundo determinado nas células.

5.1.5 Determinação da eficiência do processamento radioquímico

A eficiência total do processamento radioquímico foi estabelecida experimentalmente contaminando-se seis alíquotas de água mineral, comercial, com diferentes quantidades de solução padrão de ^{226}Ra com concentração de atividade de $(19,52 \pm 0,72)$ Bq/g de solução padrão. As alíquotas foram submetidas a todo o processamento radioquímico e a atividade de ^{226}Ra contida nos frascos de acumulação foi determinada.

Os dados obtidos com a atividade de ^{226}Ra contido nas alíquotas de água mineral e as atividades de ^{226}Ra medidas nos frascos de acumulação foram utilizados para estabelecer a curva de eficiência do processamento radioquímico que pode ser expressa pela equação:

$$^{226}\text{Ra}_{\text{medido}} = (0,860 \pm 0,070) \cdot (^{226}\text{Ra})_{\text{real}} + (0,0008 \pm 0,0080) \quad (5.2)$$

com valores de atividades expressos em Bequerel. A equação (5.2) foi obtida aplicando-se o método dos mínimos quadrados, ponderado pelas imprecisões de ambas variáveis. A matriz C de covariância desse ajuste é:

$$C = \begin{bmatrix} 0,0048 & -0,0005 \\ -0,0005 & 0,0001 \end{bmatrix} \quad (5.3)$$

Os valores do coeficiente de correlação linear r e do χ^2 amostral correspondentes a esse ajuste são iguais a 0,9903 e 1,0484, respectivamente.

5.2 Determinação das concentrações de atividade de ^{222}Rn – poços 1, 2 e 3

Os poços 1, 2 e 3, que tiveram as suas águas amostradas entre julho de 2005 e agosto de 2006, foram processadas utilizando a mesma linha de extração construída para as medidas de concentração de atividade de ^{226}Ra .

Os frascos de amostragem descritos no capítulo 4 são acoplados à linha de extração de radônio na mesma posição que os frascos de acumulação para medida da atividade de rádio. Um fluxo de argônio é feito borbulhar através da alíquota de água subterrânea e o radônio extraído da solução é transferido para o detector contagem da atividade alfa. A contagem alfa foi transformada em taxa de desintegração de radônio no interior do detector utilizando-se fatores de conversão fornecidos pelo fabricante dos detectores.

5.2.1 Procedimento de calibração do sistema de extração para a determinação da concentração de atividade do ^{222}Rn

Aproximadamente 20 kg de uma solução $0,5 \text{ mol/dm}^3$ de HCl foi contaminada com rádio para produzir uma concentração de atividade de ^{226}Ra , medida em laboratório com a técnica da emanção de radônio, de $(13,60 \pm 0,68) \text{ Bq.dm}^{-3}$. Em seguida, em cerca de 15 dm^3 dessa solução, foi feito borbulhar ar atmosférico por aproximadamente 1 hora, com um fluxo alto o suficiente para agitar todo o volume.

A solução foi então dividida em alíquotas que preencheram completamente cinco frascos de amostragem e deixada em repouso para acumulação de radônio. Após o período de acumulação, os frascos de amostragem foram acoplados à linha de extração e a taxa de desintegração de ^{222}Rn contido no interior dos detectores medida. Um fator de conversão (ϕ) entre a atividade de ^{222}Rn dentro detector e a atividade de ^{222}Rn em solução pode, então, ser definido como:

$$\phi = \frac{\text{atividade de } ^{222}\text{Rn em solução (Bq)}}{\text{taxa de decaimento de } ^{222}\text{Rn dentro do detector (d.p.m.)}} \quad (5.4)$$

A tabela 5.1 apresenta cinco estimativas do fator de conversão (\emptyset), os volumes dos frascos de amostragem, a atividade total de ^{226}Ra no interior de cada frasco, o tempo de acumulação do radônio e as taxas de desintegração de ^{222}Rn no interior do frasco no final do período de acumulação. O valor médio do fator de conversão é $(0,040 \pm 0,002)$ Bq/d.p.m. A incerteza corresponde a um erro padrão da média.

Tabela 5.1 – Calibração do procedimento de medida de atividade de ^{222}Rn dissolvido

Volume do frasco (dm^3)	Atividade de ^{226}Ra (Bq)	Tempo de acumulação (min)	Atividade de ^{222}Rn (Bq)	Taxa de decaimento de ^{222}Rn (d.p.m)	Fator de conversão ϕ (Bq/d.p.m)
2,940±0,028	40,0±2,0	25670	38,4±1,9	1015±13	0,0378±0,0019
3,040±0,028	41,3±2,1	27327	40,0±2,0	1016±21	0,0394±0,0021
3,020±0,028	41,1±2,1	31796	40,3±2,1	919±13	0,0439±0,0024
3,020±0,028	41,1±2,1	28700	40,0±2,0	1140±19	0,0351±0,0018
3,020±0,028	41,1±2,1	30195	40,2±2,1	931±11	0,0442±0,0024

5.2.2 Processamento dos dados

Com a obtenção do fator de conversão da taxa de decaimento de ^{222}Rn dentro da célula, em concentração de atividade, o passo seguinte no procedimento de calibração é o tratamento fornecido aos dados obtidos em cada alíquota de água.

O radônio contido na alíquota de água subterrânea é transferido para o detector e espera-se por quatro horas para que o ^{222}Rn entre em equilíbrio radioativo secular com os seus produtos de desintegração alfa emissores e de meia vida curta: o ^{218}Po e o ^{214}Po . Após esse período, a taxa de contagem alfa total dentro do detector (A) varia seguindo a lei do decaimento radioativo

$$A = A_0 e^{-\lambda_{Rn} t} \quad (5.5)$$

onde λ_{Rn} é a constante de decaimento do ^{222}Rn , t é o tempo decorrido após a extração do radônio e A_0 corresponde a três vezes a taxa de contagem inicial do ^{222}Rn dentro do detector.

O tempo de contagem dentro da célula foi estabelecido com sendo de 6 horas ininterruptas, divididas em intervalos de 15 minutos (Δt), fornecendo, dessa forma, um conjunto de 24 contagens brutas G_i consecutivas. A taxa de contagem líquida do conjunto de dados é obtida a partir da expressão,

$$A_i = \frac{G_i}{\Delta t} - B \quad (5.6)$$

onde B é a taxa de contagem de fundo do detector.

As taxas de contagem alfa líquidas são, então ajustadas por mínimos quadrados à equação (5.5) para estimar A_0 na forma:

$$A_o = \frac{\sum_{i=1}^{24} \frac{A_i e^{-\lambda_{Rn} t_i}}{\sigma^2 A_i}}{\sum_{i=1}^{24} \frac{e^{-2\lambda_{Rn} t_i}}{\sigma^2 A_i}} \quad (5.7)$$

Com estimativa da variância dada por,

$$\sigma^2 A_o = \left(\frac{1}{23} \sum_{i=1}^{24} \frac{(A_i - A_o e^{-\lambda_{Rn} t_i})^2}{\sigma^2 A_i} \right) \frac{1}{\left(\sum_{i=1}^{24} \left(\frac{e^{-\lambda_{Rn} t_i}}{\sigma A_i} \right)^2 \right)} \quad (5.8)$$

Assumindo que o decaimento observado durante os intervalos de 15 minutos de contagem sejam extraídos de uma distribuição de Poisson, caracterizada por um valor médio estimado por G_i , as variâncias $\sigma^2 A_i$ são estimadas por

$$\sigma^2 A_i = \frac{G_i}{(\Delta t)^2} + \sigma^2 B \quad (5.9)$$

onde $\sigma^2 B$ é a variância da taxa de contagem de fundo.

A avaliação da qualidade do ajuste é feita aplicando o teste χ^2 com nível de significância α (Bevington, 1969) para a variável definida como,

$$\chi^2_{obs} = \frac{1}{23} \sum_{i=1}^{24} \frac{(A_i - A_o e^{-\lambda_{Rn} t_i})^2}{\sigma^2 A_i} \quad (5.10)$$

A taxa de contagem inicial de radônio é transformada em taxa de decaimento inicial de radônio dentro do detector, usando o fator de correção individual para cada detector utilizado e em seguida em atividade do radônio dentro do frasco de amostragem utilizando de conversão estimada para a linha de extração. Por fim

cada valor de atividade calculado é dividido pelo volume do frasco correspondente, fornecendo assim a concentração de atividade da alíquota.

Para cada poço visitado é coletado três alíquotas de água subterrânea, sendo obtido, portanto, em laboratório, três valores distintos de concentração de atividade de radônio que devem ser corrigidos para o momento de extração do radônio C_{oj} ($j = 1, 2, 3$).

Como as determinações ocorrem em diferentes instantes (t_j) após a obtenção das alíquotas é necessário corrigir o decaimento do radônio e estimar sua concentração de atividade (C_G) presente na água subterrânea no momento da amostragem. Assim após a amostragem da água subterrânea, a concentração de atividade do radônio $C(t)$, em função do tempo, dentro do frasco de amostragem é dada por,

$$C(t) = C_G e^{-\lambda_{Rn} t} + C_{Ra} (1 - e^{-\lambda_{Rn} t}) \quad (5.11)$$

onde C_{Ra} é a concentração de atividade de rádio na alíquota de água subterrânea. De uma forma geral, é esperado C_G ser muito maior que C_{Ra} , já que ^{222}Rn é normalmente enriquecido em relação ao rádio em águas subterrâneas, assim a equação (5.11) pode reescrita na seguinte forma,

$$C(t) = (C_G - C_{Ra}) e^{-\lambda_{Rn} t} + C_{Ra} \quad (5.12)$$

onde $C(t)$ é expresso como uma função linear da variável $Z = e^{-\lambda_{Rn} t}$. O valor de C_G é estimado por ajuste de mínimos quadrados para o par observado (C_{oj}, Z_j). Para a equação (5.12),

$$a = C_{Ra} \quad (5.13)$$

sendo a interseção do ajuste uma função linear e

$$b = (C_G - C_{Ra}) \quad (5.14)$$

sua inclinação, a estimativa da concentração de atividade do radônio na alíquota de água subterrânea, no momento da amostragem, é dada por:

$$C_G = b + a \quad (5.15)$$

Com uma estimativa da variância fornecida por

$$\sigma^2 C_G = \sigma^2 + \sigma^2 b + 2\sigma^2 ab \quad (5.16)$$

onde $\sigma^2 a$ e $\sigma^2 b$ representam, respectivamente, as variâncias da intersecção e da estimativa da inclinação, e $\sigma^2 ab$ a covariância entre eles.

5.3 Determinação das concentrações de atividade de ^{222}Rn – poços 4 e 5

Os poços 4 e 5 tiveram as suas águas amostradas entre março de 2007 e abril de 2008 utilizando-se o sistema desenvolvido para realizar todo o procedimento de coleta de água e extração de radônio diretamente no campo, que foi descrito no capítulo 4.

Para calcular as concentrações de atividade de ^{222}Rn , uma relação entre a taxa de contagem alfa observada no detector, após a extração de radônio da amostra de água, e a atividade do gás em solução, antes de extração, deve que ser estabelecida. Esta relação foi estabelecida construindo, para cada detector, uma curva de calibração. Na construção da curva de calibração dezessete alíquotas com 200cm^3 , cada uma, de uma solução $\text{HCl } 0.5 \text{ mol/dm}^3$, foram contaminadas com diferentes massas de um padrão com concentração de atividade de ^{226}Ra igual a $(1119 \pm 1) \text{ kB/kg}$. As massas utilizadas variaram de $(0,0452 \pm 0,0001) \text{ g}$ a $(2,1223 \pm 0,0001) \text{ g}$. Após contaminação com massas de rádio as alíquotas foram transferido para frascos de acumulação específicos.

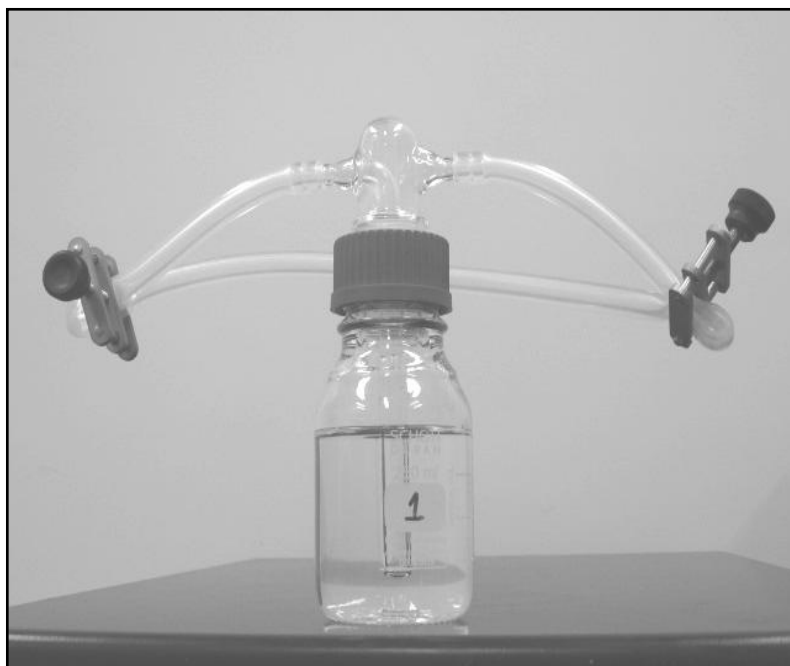


Figura 5.8 – Frasco lavador de gás utilizado no procedimento de calibração

Após a contaminação as alíquotas foram transferidas para frascos de acumulação específicos, e uma atmosfera isenta de radônio foi estabelecida dentro de cada frasco com a passagem de um fluxo de gás argônio, igual a $1\text{dm}^3/\text{min}$, durante 15 minutos. Em seguida os frascos foram selados e armazenados por um período mínimo de oito dias. Na figura 5.8 é mostrado um frasco selado utilizado no procedimento de calibração. Ao término do período de acumulação as concentrações de atividade de ^{222}Rn obtidas dentro dos frascos variaram de 38 Bq a 2260 Bq.

O procedimento de calibração tem continuidade, com a alocação do frasco de acumulação, na linha de extração portátil, no espaço reservado ao frasco utilizado como retentor líquido, identificado na figura 4.9 (capítulo 4) como item 6. Em seguida é feita a transferência do gás extraído para o detector que deve permanecer em repouso por um período de 4 horas a fim de que o equilíbrio entre o radônio e seus filhos de meia-vida curta seja alcançado. Após esse período o detector é acoplado a um sistema eletrônico de contagem e sua taxa de contagem alfa determinada. Esse sistema eletrônico (figura 5.9) é o mesmo utilizado nas determinações de ^{222}Rn , aplicado aos poços 1, 2, e 3, e nas determinação de ^{226}Ra seguindo o procedimento aqui adotado.



Figura 5.9 – Unidade aquisitora de dados AB5 – Pylon (Sistema eletrônico)

No processo de calibração, as contagens de decaimento alfa são acumuladas em 24 intervalos consecutivos de 15 minutos (Δt). Assumindo que cada contagem (C_i) é extraída de uma distribuição de Poisson, a taxa de contagem do decaimento é dada por,

$$G_i = \frac{C_i}{\Delta t} \pm \frac{\sqrt{C_i}}{\Delta t} \quad (5.17)$$

e a taxa de contagem líquida (N_i) é obtida após a subtração da taxa de contagem de fundo do detector \bar{B} de G_i . A variância da taxa de contagem líquida é dada por,

$$\sigma_{N_i}^2 = \frac{C_i}{\Delta t^2} + \sigma_B^2 \quad (5.18)$$

onde σ_B^2 é a variância da taxa de contagem de fundo do detector.

A lei do decaimento radioativo

$$N = N_o e^{-\lambda t} \quad (5.19)$$

é então ajustadas as taxas de contagens líquidas N_i para fornecer a taxa de contagem de ^{222}Rn no detector, no início da contagens N_o como,

$$N_o = \frac{\sum_{i=1}^n \frac{N_i e^{-\lambda_{Rn} t_i}}{\sigma_{N_i}^2}}{\sum_{i=1}^n \frac{e^{-2\lambda_{Rn} t_i}}{\sigma_{N_i}^2}} \quad (5.20)$$

Neste caso n é igual a 24, λ_{Rn} é a constante de decaimento de ^{222}Rn e t_i é tempo transcorrido até o início da contagem.

A qualidade dos ajustes é verificada com a aplicação do método de χ^2 nos χ_{obs}^2 obtidos por

$$\chi_{obs}^2 = \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n \frac{(N_i - N_o e^{-\lambda_{Rn} t_i})^2}{\sigma_{N_i}^2} \quad (5.21)$$

e adotando um nível de confiança de 95%.

A variância de N_o ajustado é dado por

$$\sigma_{N_o}^2 = \frac{\chi_{obs}^2}{\sum_{i=1}^n \left(\frac{e^{-\lambda_{Rn} t_i}}{\sigma_{N_i}^2} \right)^2} \quad (5.22)$$

A taxa de contagem N_o no início da contagem alfa tem de ser corrigido para fornecer a taxa de contagem de radônio $N_{inicial}$ no momento em que o radônio é extraído da solução. Sendo T o intervalo de tempo entre a remoção do radônio da solução e o início da contagem alfa, e assumindo o equilíbrio radioativo secular entre o radônio e seus filhos de meia-vida curta, $N_{inicial}$ é dada a partir da expressão:

$$N_{inicial} = N_o e^{\lambda_{Rn} T} \quad (5.23)$$

A atividade total de ^{222}Rn dentro do frasco de acumulação é num gráfico, plotado contra a taxa de decaimento de ^{222}Rn dentro do detector, fornecendo uma reta representada pela equação (5.24). Nas figuras 5.10 e 5.11 são mostradas duas curvas de calibração obtidas com os detectores utilizados nesse procedimento de calibração.

$$\left(^{222}\text{Rn}_{\text{Atividade total dentro do frasco de acumulação}} \right) = a N_{inicial} + b \quad (5.24)$$

Essa reta é ajustada para os pontos experimentais por mínimos quadrados, ponderado pelo inverso das variâncias totais, o qual corresponde à propagação das variâncias nas duas variáveis, Wolberg (1997). A tabela 5.2 apresenta os coeficientes das retas de calibração de todos os onze detectores utilizados, bem como, o χ_{obs}^2 dos ajustes, a covariância entre 'a' e 'b' e o coeficiente de correlação obtido.

Para todos os detectores (figura 5.12), o valor do χ^2 observado e o coeficiente de correlação, indicam que a reta de calibração é bem ajustada para os pontos experimentais. As inclinações são similares para todos os detectores e suas incertezas relativas são, na maioria, dos detectores, equivalentes a cerca de 3%.

Tabela 5.2 – Coeficientes das retas de calibração dos detectores (Fabricante EDA)

Detector	Coeficiente de inclinação	Intersecção	Covariância	χ^2_{obs} dos ajustes	Coeficiente de correlação
2	0,748±0,026	-9,9±6,0	-0,081	8,74	0,998
3	0,702±0,0026	-4,6±5,7	-0,071	12,66	0,998
4	0,599±0,020	0,5±4,2	-0,046	12,09	0,999
6	0,604±0,020	-2,3±4,7	-0,051	8,92	0,999
7	0,642±0,020	8,0±3,1	-0,035	2,28	0,998
8	0,545±0,021	7,2±4,4	-0,045	6,76	0,997
9	0,663±0,017	-10,1±4,1	-0,029	6,44	0,999
10	0,660±0,029	3,5±5,7	-0,082	13,96	0,997
11	0,633±0,016	-11,5±3,9	-0,038	4,16	0,999
13	0,732±0,018	4,3±3,6	-0,035	5,23	0,998
14	0,581±0,007	-2,1±2,5	-0,008	1,89	1,000

Sabendo-se que a incerteza que afeta as taxas de decaimento possui duas componentes distintas, sendo que primeira componente reflete a natureza probabilística do processo de decaimento radioativo e pode ser estimada de forma relativamente simples, uma vez que obedece a distribuição de Poisson, e que a segunda componente reflete a composição de todas as variáveis aleatórias que podem influenciar desde a obtenção dos dados até seu tratamento, um teste de repetibilidade foi realizado para estimar como os valores individuais das taxas de decaimento se distribuem em torno do seu valor médio.

Os testes de repetibilidade foram realizados a partir de dois conjuntos de alíquotas de 200 cm³, com 10 e 12 elementos, respectivamente. Cada uma das alíquotas foram contaminadas com a mesma massa de uma solução padrão de rádio com concentração de atividade igual a (1119 ± 1) kBq/kg. Com isso foram obtidas conjuntos de soluções com concentração de atividade total de rádio entorno de 35 Bq no primeiro conjunto de dados e 2800 Bq no segundo. Todos os frascos tiveram

suas atmosferas livres de traços de radônio, com a passagem de um fluxo de argônio igual a $1\text{dm}^3/\text{minuto}$, durante 15 minutos, e em seguida foram selados e armazenados por período mínimo de oito dias.

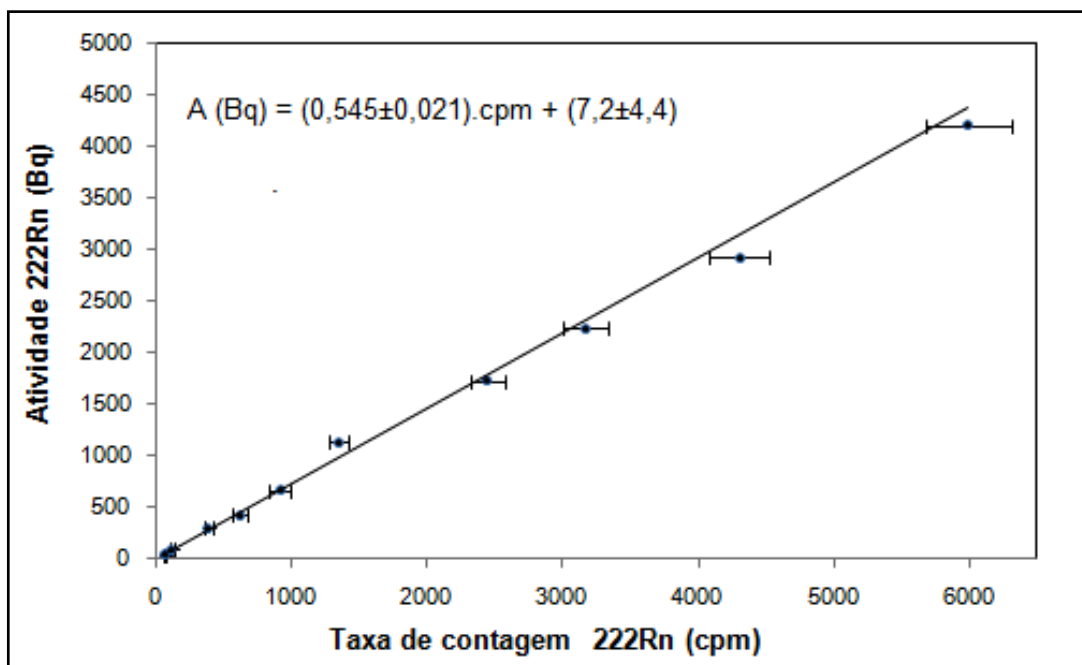


Figura 5.10 - Curva de calibração do detector 08

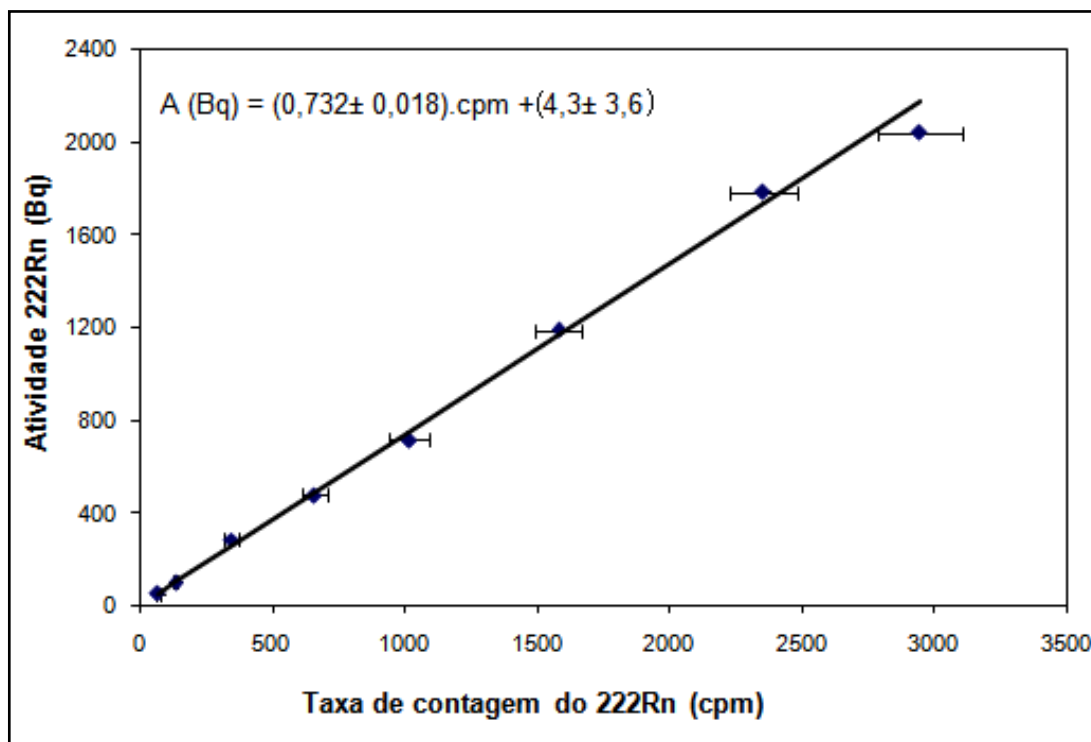


Figura 5.11 – Curva de calibração do detector 13

Após o período mínimo de oito dias foram obtidas soluções com concentração de atividade de radônio com cerca de 250 Bq, no primeiro conjunto, e 2100 Bq para o segundo conjunto. Estes valores encontram-se dentro dos valores de concentração utilizados no processo de calibração.



Figura 5.12 – Detector cintilador - EDA

Todos os detectores utilizados passaram pelo processo de transferência de gás radônio onde foram utilizadas, em cada um, as 12 soluções com concentração de atividade baixa e, também, as 10 soluções com concentração de atividade alta. Uma vez que, dentro de cada conjunto, as atividades de ^{222}Rn nas alíquotas são semelhantes, mas não são iguais, é necessário introduzir um artifício para estimativa da repetibilidade. O artifício consiste em calcular o valor médio das taxas de contagens ($N_{inicial}$) no momento em que o radônio foi extraído da solução. Inicialmente a taxa de contagem líquida para atividade de rádio é calculada como

$$\frac{N}{A} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \frac{(N_{inicial})_i}{A_i} \quad (5.25)$$

o desvio padrão correspondente é calculado como

$$\sigma_{\frac{N}{A}} = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n \left(\frac{(N_{initial})_i}{A_i} - \frac{N}{A} \right)^2} \quad (5.26)$$

A média das taxas de contagens ponderada pelo inverso das atividades é dada por

$$N_p = \frac{n \frac{N}{A}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{A_i}} \quad (5.27)$$

com incerteza calculada a partir da expressão

$$\sigma_{N_p} = \frac{n \sigma_{\frac{N}{A}}}{\sum_{i=1}^n \frac{1}{A_i}} \quad (5.28)$$

A repetibilidade da taxa de contagem é então estimada pela razão entre σ_{N_p} e N_p . A repetibilidade obtida para os detectores variou de 6,1% a 9,6%, para o conjunto de atividades baixas, e de 4,0% para 7,8%, para o conjunto de atividades altas.

6. RESULTADOS E DISCUSSÃO

6.1 O comportamento das concentrações de atividade de ^{222}Rn

Os dados sobre a concentração de atividade de ^{222}Rn na água subterrânea dos poços analisados foram obtidos com técnicas de amostragem diferentes, como descrito no capítulo 4, que levou também a pequenas diferenças nas técnicas de medida. No que segue, os resultados serão apresentados na ordem cronológica da sua obtenção. Os poços analisados entre julho de 2005 e agosto de 2006 (poços 1, 2 e 3), com a utilização da primeira metodologia implantada no laboratório de Geofísica Nuclear do IAG-USP, e os poços analisados entre fevereiro de 2007 e abril de 2008 (poço 4 e 5), com a utilização da segunda metodologia.

A tabela 6.1 apresenta os dados analíticos obtidos na água do poço 1. Para cada alíquota de água analisada, é apresentado o seu volume, o instante do início da contagem da atividade alfa, a partir do momento em que a água é coletada no poço, e o χ^2_{obs} do ajuste das contagens alfa à equação 5.5, que fornece uma estimativa da contagem alfa no instante em que a alíquota é coletada. Esses valores de contagem são convertidos na atividade total do radônio (C_o) contido em cada alíquota aplicando-se o fator de correção de $(0,040 \pm 0,002)$ Bq/dpm, obtido durante a calibração do sistema de detecção (ver capítulo 5).

Em todos os casos, 24 contagens foram ajustadas para se estimar a atividade do radônio contido em cada alíquota. Considerando que apenas um parâmetro é estimado por esse ajuste e adotando-se um nível de significância de 0,05, espera-se que a maioria dos χ^2_{obs} estimados fiquem entre 11,7 e 38,1. Uma vez que o ajuste foi repetido 38 vezes na análise dos dados da água, proveniente do poço 1, o número esperado de valores χ^2_{obs} fora desse intervalo é 2. O número realmente observado, nenhum, não difere muito do esperado.

A concentração de atividade do radônio na água subterrânea é obtida ajustando-se as concentrações de atividade de cada alíquota à equação (5.12). A tabela 6.1 apresenta, também, a concentração de atividade obtida e o valor de χ^2_{obs}

nesse ajuste. Com a exceção da primeira campanha de amostragem feita nesse poço, 3 alíquotas foram coletadas em cada campanha e, nesse caso, espera-se que a maioria dos χ^2_{obs} fiquem entre 0,001 e 5,02, considerando um nível de significância de 0,05. Como o ajuste foi repetido dez vezes nessas condições, espera-se encontrar entre nenhum e um χ^2_{obs} fora desse intervalo. Nenhum valor ficou fora do intervalo esperado. No caso da primeira campanha, o valor de χ^2_{obs} também ficou dentro do intervalo esperado.

A figura 6.1 apresenta a variação da concentração de atividade do ^{222}Rn na água do poço 1 ao longo do período de observação. A reta horizontal traçada no gráfico indica o valor médio das estimativas de concentração de atividade que é de (76 ± 7) Bq/dm³, sendo que a incerteza indicada corresponde a um erro padrão da média.

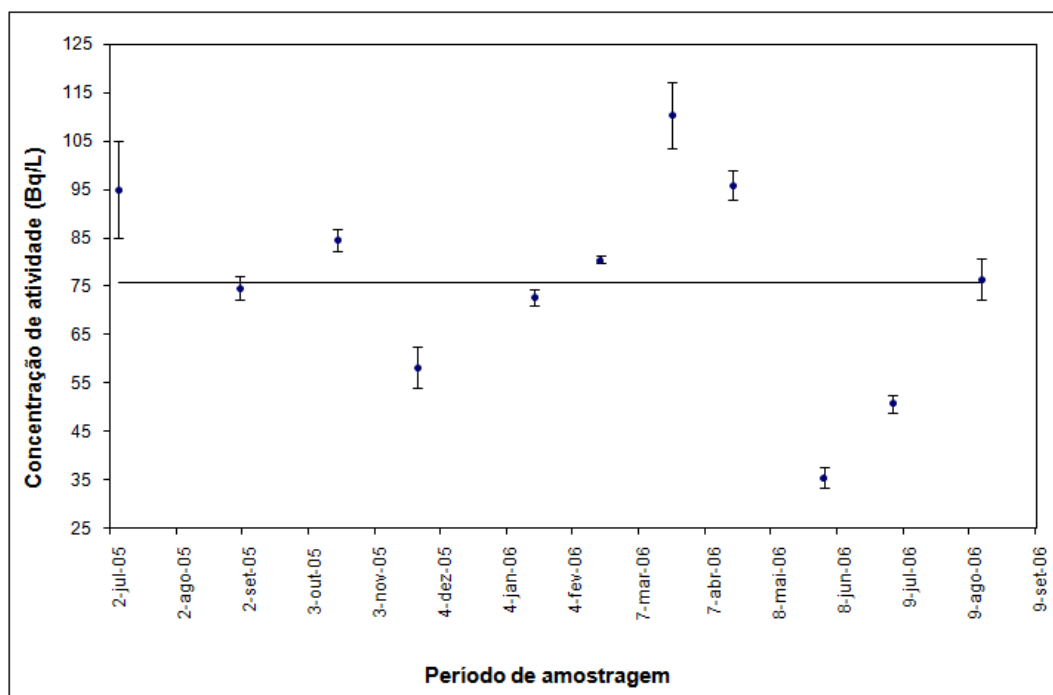


Figura 6.1 – Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 1

Os dados apresentados na tabela 6.1 não se ajustam a nenhum polinômio de grau baixo, nem mesmo ao valor constante representado pela média das medidas, e também não se ajustam a função periódica com um número baixo de harmônicos.

Uma vez que as incertezas das medidas foram estimadas com cuidado e não devem ter sido subestimadas, a figura 6.1 sugere que as concentrações de atividade sejam, de fato, muito variáveis em torno do seu valor médio. Um máximo local de $(110,3 \pm 6,7)$ Bq/dm³, ocorrido em março de 2006, separa dois mínimos locais ocorridos em novembro de 2005 e junho de 2006.

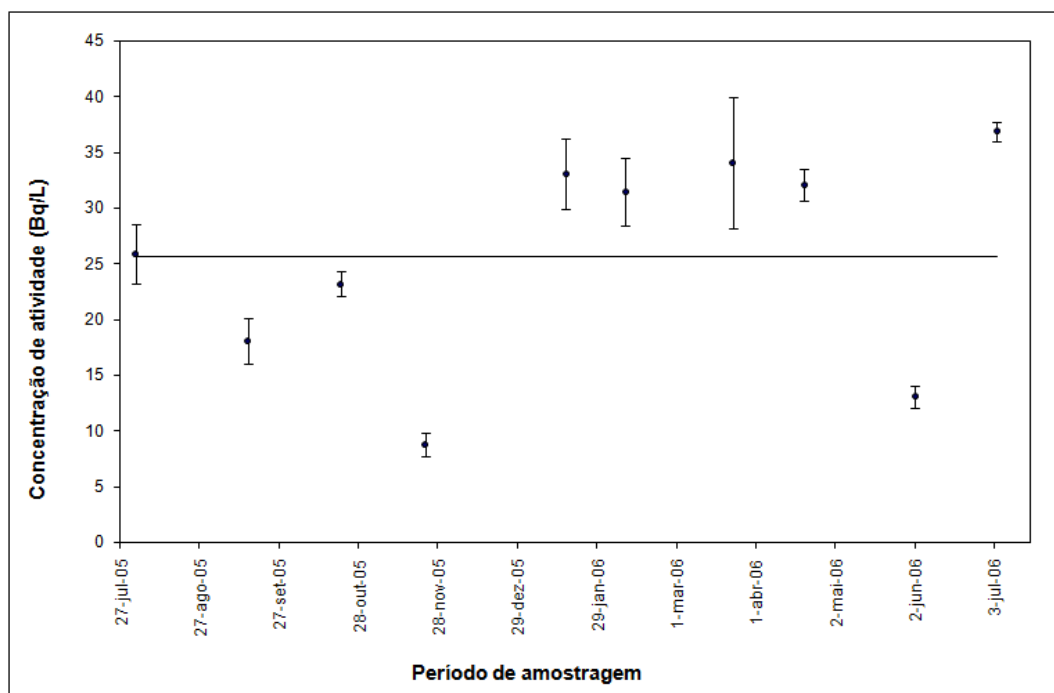


Figura 6.2 – Variação da concentração de atividade de ²²²Rn nas águas extraídas do poço 2

As tabelas 6.2 e 6.3 apresentam os dados analíticos obtidos com as águas extraídas dos poços 2 e 3, respectivamente. A boa qualidade dos resultados obtidos pode ser verificada analisando-se os valores de χ^2_{obs} obtidos tanto no ajuste para se obter a contagem alfa inicial, no instante da coleta de cada alíquota, quanto na estimativa da concentração de atividade da água subterrânea extraída desses dois poços ao longo de um ano de observação.

A figura 6.2 apresenta a variação da concentração da atividade de radônio extraído da água do poço 2. O valor médio da concentração de atividade, entre julho de 2005 e agosto de 2006 foi de (26 ± 3) Bq/dm³ (um erro padrão da média). A concentração de atividade do radônio se mostrou muito variável, mas com um padrão mais irregular do que o observado no poço 1.

Um máximo local menos evidente ocorre entre fevereiro e junho de 2006, separando um mínimo local centrado em meados de novembro de 2005 e um mínimo local, menos evidente, no começo de junho de 2006.

A figura 6.3 apresenta uma variação da concentração da atividade de radônio em função do tempo mais regular para a água do poço 3. O valor médio da concentração de atividade, nesse caso, foi de (39 ± 4) Bq/dm³. Um máximo local de (59 ± 11) Bq/dm³ separa dois mínimos locais bem definidos entre dezembro de 2005 e janeiro de 2006 e em julho de 2006.

As concentrações de atividade de radônio observadas nos três poços analisados, no período compreendido entre julho de 2005 e agosto de 2006, apresentaram variações ao longo do ano. Apesar de serem diferentes em amplitude e menos evidentes no caso do poço 2, essas variações têm a característica comum de apresentarem mínimos locais entre novembro de 2005 e janeiro de 2006 e entre julho e agosto de 2006, separados por um máximo local na concentração de atividade observado em março e abril de 2006. Embora a observação tenha se limitado a um único ano, o aspecto das observações expresso nas figuras 6.1, 6.2 e 6.3 sugerem que essas variações se repitam anualmente.

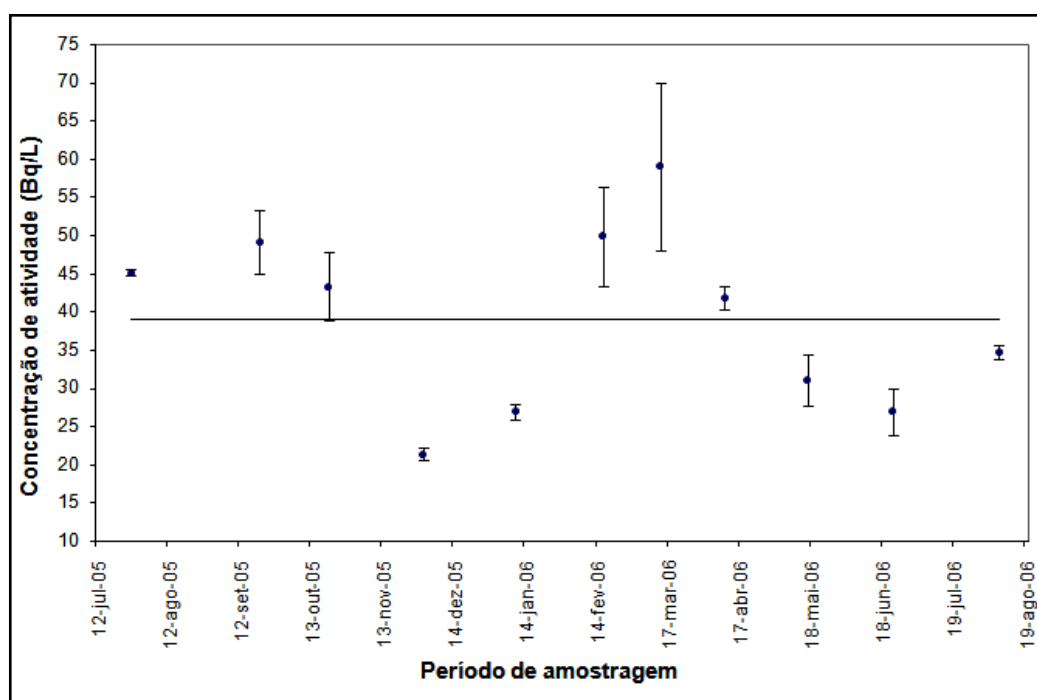


Figura 6.3 – Variação da concentração de atividade de ²²²Rn nas águas extraídas do poço 3

Tabela 6.1 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 1

Coleta	Alíquota	Volume da alíquota (dm ³)	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 da contagem alfa	Concentração de atividade (Bq/L)	χ^2 para o ajuste da concentração de atividade
1	1	2.980±0.028	337	23.5	95±10	11.586
	2	2.940±0.028	3115	25.4		
	3	3.020±0.028	4670	21.4		
	4	3.020±0.028	7471	33.1		
	5	3.060±0.028	8917	35.7		
	6	3.040±0.028	11724	16.7		
	7	3.040±0.028	13160	20.3		
	8	3.000±0.028	14737	27.9		
2	1	3.020±0.028	376	36.0	74.7±2.5	0.623
	2	3.040±0.028	1933	28.5		
	3	3.020±0.028	6270	19.4		
3	1	3.020±0.028	4657	22.3	84.5±2.4	0.134
	2	3.000±0.028	1740	15.2		
	3	3.020±0.036	3249	28.8		
4	1	3.020±0.028	12992	21.4	58.2±4.2	0.374
	2	3.020±0.028	10404	37.1		
	3	2.940±0.028	8703	23.7		
5	1	2.940±0.028	392	35.8	72.6±1.7	0.204
	2	3.020±0.028	8975	37.1		
	3	3.020±0.028	10513	35.5		
6	1	3.020±0.028	2837	22.1	80.45±0.77	0.018
	2	2.940±0.028	4172	22.2		
	3	3.020±0.028	7247	31.4		
7	1	3.020±0.028	21664	30.5	110.3±6.7	0.154
	2	2.940±0.028	18941	21.1		
	3	3.040±0.028	20337	18.8		

Tabela 6.1 - Continuação

Coleta	Alíquota	Volume da alíquota (dm ³)	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 da contagem alfa	Concentração de atividade (Bq/L)	χ^2 para o ajuste da concentração de atividade
8	1	2.980±0.028	318	37.0	95.9±3.1	0.272
	2	3.040±0.028	12800	33.4		
	3	3.020±0.028	11735	28.2		
9	1	3.040±0.028	8591	28.4	35.5±2.2	0.107
	2	2.940±0.028	9214	31.8		
	3	3.020±0.028	7200	33.8		
10	1	3.020±0.028	375	23.4	50.8±1.8	0.624
	2	3.040±0.028	1736	29.6		
	3	3.020±0.028	6050	24.9		
11	1	3.020±0.028	2915	27.5	76.4±4.2	0.575
	2	3.020±0.028	4232	24.4		
	3	3.020±0.028	7406	34.2		

Tabela 6.2 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 2

Coleta	Alíquota	Volume da alíquota (dm ³)	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 da contagem alfa	Concentração de atividade (Bq/L)	χ^2 para o ajuste da concentração de atividade
1	1	3.020±0.028	5960	21.2	25.9±2.7	0.318
	2	2.980±0.028	9141	27.3		
	3	3.020±0.036	7437	21.4		
2	1	3.020±0.028	7229	32.7	18.1±2.1	0.336
	2	2.940±0.028	6093	31.4		
	3	3.020±0.036	8928	23.3		
3	1	3.040±0.028	1503	29.6	23.2±1.1	0.755
	2	3.040±0.028	2823	33.7		
	3	3.020±0.028	7498	19.1		
4	1	3.040±0.028	4358	32.2	8.8±1.1	1.392
	2	3.020±0.028	5860	37.2		
	3	3.040±0.028	7631	8.7		
5	1	3.020±0.028	1568	33.9	33.1±3.2	1.625
	2	2.940±0.028	3056	21.9		
	3	2.980±0.028	4457	34.8		
6	1	3.020±0.028	11682	30.4	31.5±3.0	1.277
	2	3.000±0.028	10420	35.5		
	3	2.980±0.028	15969	21.1		
7	1	3.000±0.028	9031	23.5	34.1±5.9	1.694
	2	3.020±0.028	7712	20.9		
	3	3.040±0.028	10590	23.0		
8	1	2.940±0.028	4474	22.1	32.1±1.4	0.105
	2	3.000±0.028	5979	20.9		
	3	3.000±0.028	7517	21.4		

Tabela 6.2 - Continuação

Coleta	Alíquota	Volume da alíquota (dm ³)	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 da contagem alfa	Concentração de atividade (Bq/L)	χ^2 para o ajuste da concentração de atividade
9	1	3.040±0.028	3258	16.7	13.1±1.0	0.716
	2	3.020±0.028	5037	16.4		
	3	3.000±0.028	7558	21.8		
10	1	3.020±0.028	335	29.8	36.92±0.86	0.472
	2	3.040±0.028	1298	30.9		
	3	3.020±0.028	5905	27.5		

Tabela 6.3 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 3

Coleta	Alíquota	Volume da alíquota (dm ³)	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 da contagem alfa	Concentração de atividade (Bq/L)	χ^2 para o ajuste da concentração de atividade
1	1	3.013±0.036	1407	34.7	45.11±0.40	0.010
	2	3.013±0.036	3039	33.1		
	3	3.013±0.036	4265	37.1		
2	1	3.020±0.028	3358	20.9	49.1±4.2	2.897
	2	3.020±0.028	8983	21.2		
	3	3.060±0.028	1943	23.8		
3	1	3.000±0.028	8837	38.4	43.3±4.5	0.375
	2	2.980±0.028	10198	32.4		
	3	3.020±0.036	11540	32.2		
4	1	3.020±0.028	7558	41.6	21,38±0.73	0.058
	2	3.040±0.028	8987	33.1		
	3	3.020±0.028	10429	44.0		
5	1	3.020±0.028	1698	14.8	26.9±1.0	0.204
	2	3.040±0.028	2929	36.1		
	3	2.940±0.028	4314	26.1		
6	1	3.020±0.028	8851	24.5	49.9±6.5	1.290
	2	2.980±0.028	10080	30.8		
	3	3.040±0.028	6036	15.6		
7	1	3.040±0.028	14683	23.1	59±11	5.336
	2	3.040±0.028	20299	23.8		
	3	3.020±0.028	21733	16.0		
8	1	3.040±0.028	1462	25.5	41.8±1.6	0.507
	2	3.000±0.028	10383	12.8		
	3	3.040±0.028	11800	28.1		

Tabela 6.3 - Continuação

Coleta	Alíquota	Volume da alíquota (dm ³)	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 da contagem alfa	Concentração de atividade (Bq/L)	χ^2 para o ajuste da concentração de atividade
9	1	3.040±0.028	1808	30.4	31.0±3.4	1.481
	2	3.040±0.028	2876	30.0		
	3	3.040±0.028	4184	21.3		
10	1	3.040±0.028	419	21.9	26.9±3.0	3.437
	2	3.040±0.028	4219	19.7		
	3	2.980±0.028	6280	27.4		
11	1	3.000±0.028	1757	26.1	34.72±0.89	0.133
	2	3.040±0.028	3000	30.5		
	3	3.060±0.028	4690	25.5		

A figura 6.4 apresenta a variação de temperatura nos três poços amostrados entre julho de 2005 e agosto de 2006. No poço 1 as temperaturas variaram entre 22,9°C e 23,9°C, enquanto que no poço 2 as temperaturas variaram entre 20,6°C e 22,7°C e no poço 3 as temperaturas variaram entre 22,3°C e 23,5 °C. As diferenças entre as temperaturas médias dos três poços e as variações em cada poço são pequenas para justificar variações de concentração de radônio na água. Além disso, as variações de temperatura não parecem ter o mesmo caráter cíclico anual das concentrações de atividade.

O elemento radônio é um gás nobre e a sua concentração na água deve ser pouquíssimo influenciada pelo pH dessa água. No entanto, o pH fornece uma indicação da natureza química da água subterrânea que influencia a interação água-rocha e pode contribuir para uma maior transferência desse gás da matriz sólida do aquífero para a fase aquosa.

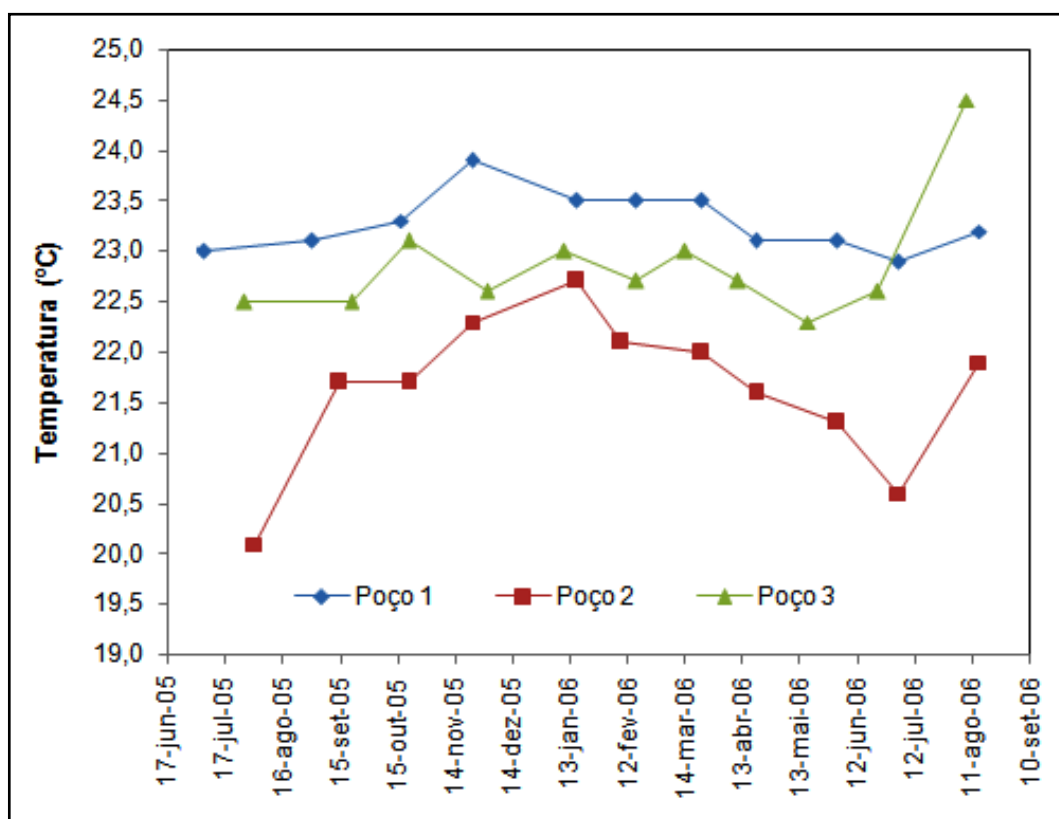


Figura 6.4 – Variação de temperatura observada nos poços 1, 2, e 3 entre julho de 2005 e agosto de 2006

A figura 6.5 apresenta a variação do pH da água dos três poços ao longo do período de observação entre julho de 2005 e agosto de 2006. A água do poço 1 tem um caráter levemente ácido, com o pH entre 4,8 e 6,6. A água do poço 2 apresentou valores de pH entre 4,5 e 6,0, enquanto que o pH da água extraída do poço 3 variou entre 5,4 e 6,5. Em nenhum caso as variações refletiram, de forma clara, uma tendência sazonal e as diferenças entre os valores de pH não parecem justificar as flutuações na concentração de atividade das águas extraídas dos três poços.

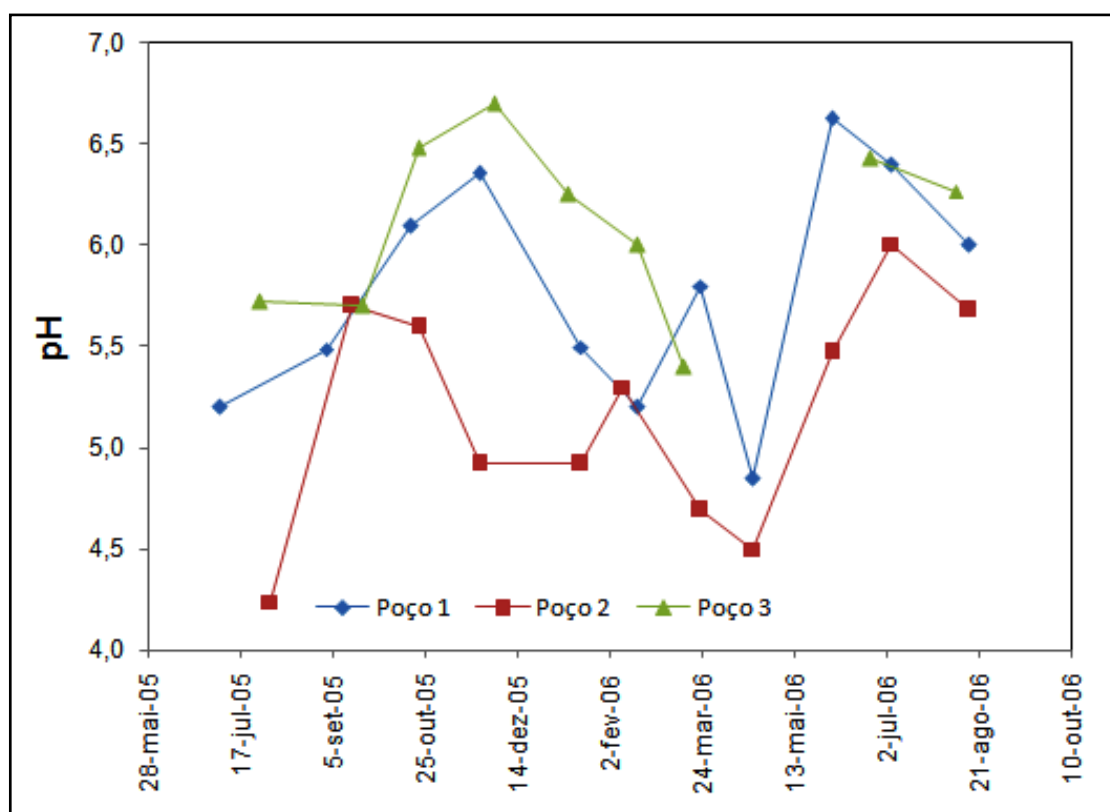


Figura 6.5 – Variação do pH observada nos poços 1, 2, e 3 entre julho de 2005 e agosto de 2006

A figura 6.6 apresenta a variação mensal da precipitação de chuvas em duas estações, D4-044, indicada por barras pretas, e D4-047, indicada por barras hachuradas, pertencentes ao Departamento de Águas e Energia Elétrica do Estado de São Paulo e localizada no município de Campinas. A barra cinza apresentada na figura corresponde à média das observações nas duas estações. A distância entre

as estações é de aproximadamente 5 km e a distância das estações até os poços 1 e 3, é da ordem de 15 km e de 30 km até o poço 2.

A figura 6.6 mostra precipitações mais pesadas entre outubro de 2005 e março de 2006. As precipitações mínimas ocorrem entre julho e agosto de 2005 e entre maio e junho de 2006. As concentrações de atividade observadas nos poços 1 e 3 e, de forma menos evidente no poço 2, reproduzem o padrão de chuvas ocorrido na região, mas com um atraso de aproximadamente dois meses. Além disso, as concentrações de atividade de radônio também reproduzem parcialmente o padrão de precipitação entre abril e junho de 2005.

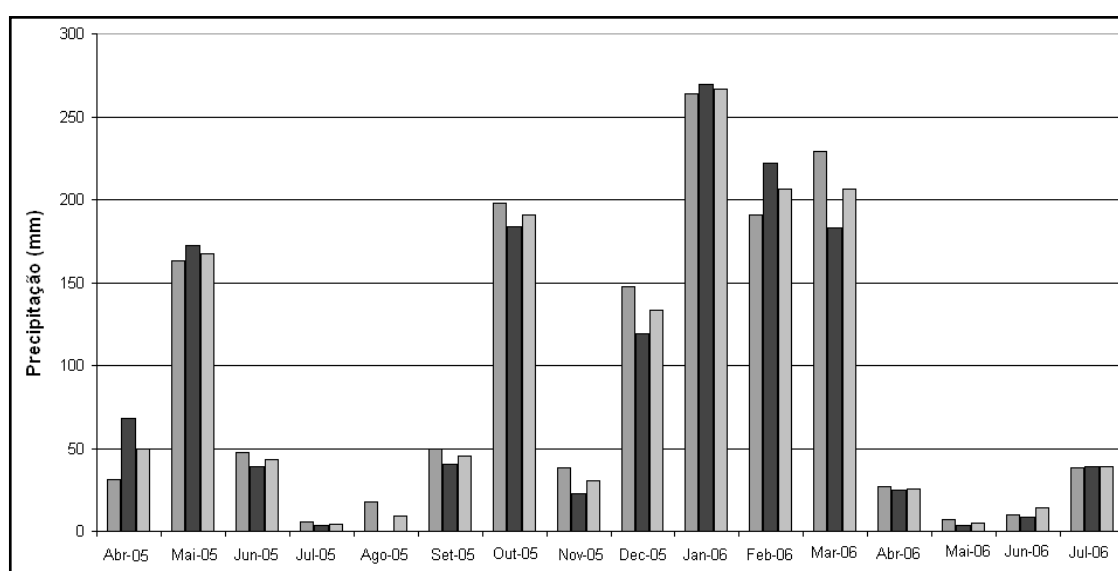


Figura 6.6 – Variação das chuvas observadas durante abril de 2005 e julho de 2006

As tabelas 6.4 e 6.5 apresentam os dados analíticos obtidos com as águas extraídas dos poços 4 e 5, respectivamente. As tabelas identificam as três alíquotas independentes correspondentes a cada coleta, o intervalo de tempo entre a coleta das alíquotas e o início das contagens alfa, o χ^2_{obs} calculado no ajuste dos dados de contagem alfa à equação 5.19. As tabelas 6.4 e 6.5 apresentam ainda a atividade total do radônio dentro do frasco de amostragem, no instante em que a alíquota foi coletada, e estimada através das retas de calibração do sistema portátil apresentadas na tabela 5.2. O valor de concentração de atividade atribuído à água

subterrânea é a média aritmética dessas estimativas e a sua incerteza é o erro padrão da média.

A boa qualidade dos resultados obtidos pode ser verificada analisando-se os valores de χ^2_{obs} obtidos no ajuste para se calcular a contagem alfa inicial, no instante da coleta de cada alíquota. No caso do poço 4 foram realizados 36 ajustes de contagens alfa. Considerando um nível de significância de 0,05, o número esperado de ajustes com χ^2_{obs} fora do intervalo ($11,7 < \chi^2_{obs} < 38,1$) é 2 e o número observado foi 3. No caso do poço 5 também foram realizados 36 ajustes sendo que apenas um apresentou valor de χ^2_{obs} fora do intervalo esperado.

Uma melhor estimativa da precisão com que os valores de concentração de atividade de radônio na água subterrânea são obtidos pode ser fornecida pela média da repetibilidade das concentrações de atividade das três alíquotas usadas para definir essa concentração de atividade. A repetibilidade é definida como sendo a razão do desvio padrão (não o erro padrão da média indicado nas tabelas) e o valor médio da concentração. No caso do poço 4, a repetibilidade média obtida foi de $(0,04 \pm 0,02)$ e no caso do poço 5 a repetibilidade foi de $(0,07 \pm 0,03)$, as incertezas correspondem a um desvio padrão.

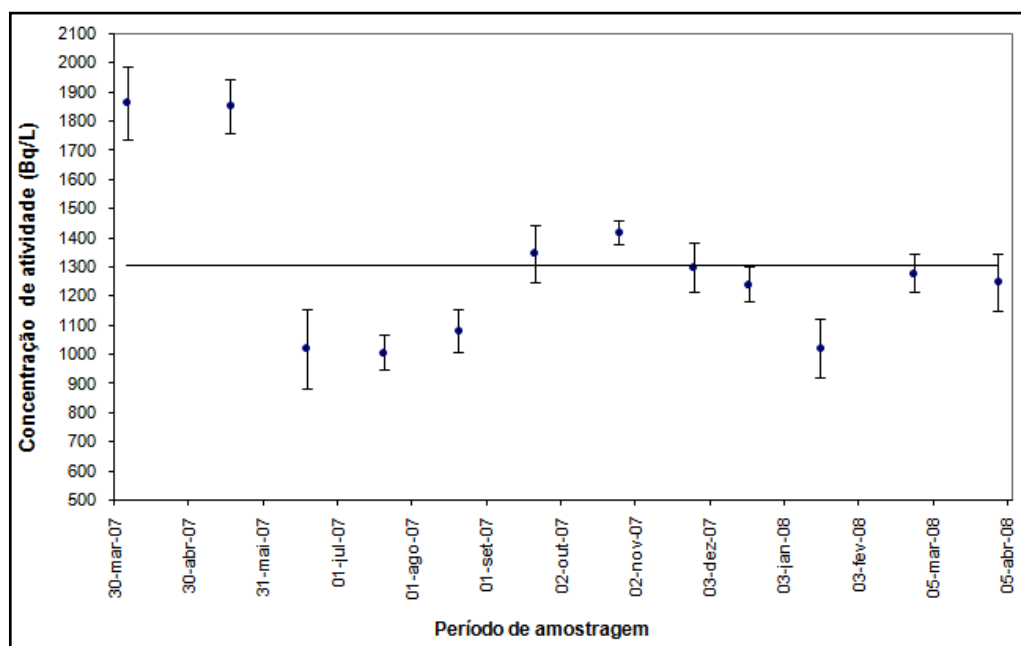


Figura 6.7– Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 4

A figura 6.7 apresenta a variação da concentração de atividade do ^{222}Rn na água do poço 4 ao longo do período de observação. A reta horizontal traçada no gráfico indica o valor médio das estimativas de concentração de atividade que é de (1307 ± 84) Bq/dm³, sendo que a incerteza indicada corresponde a um erro padrão da média. O gráfico representado nessa figura mostra um máximo local no final de outubro de 2007, com um valor de (1421 ± 24) Bq/dm³ separando dois mínimos locais entre junho e julho de 2007 e em janeiro de 2008. Completando a definição do mínimo local de junho de 2007 ocorre um aumento da concentração para valores da ordem de 1900 Bq/dm³ em maio de 2007 e completando a definição do mínimo local de janeiro de 2008 ocorre um aumento contínuo da concentração de atividade do radônio nos meses de fevereiro a abril de 2008. Como no caso dos poços analisados no período anterior, um comportamento cíclico anual também é aparente nesse gráfico.

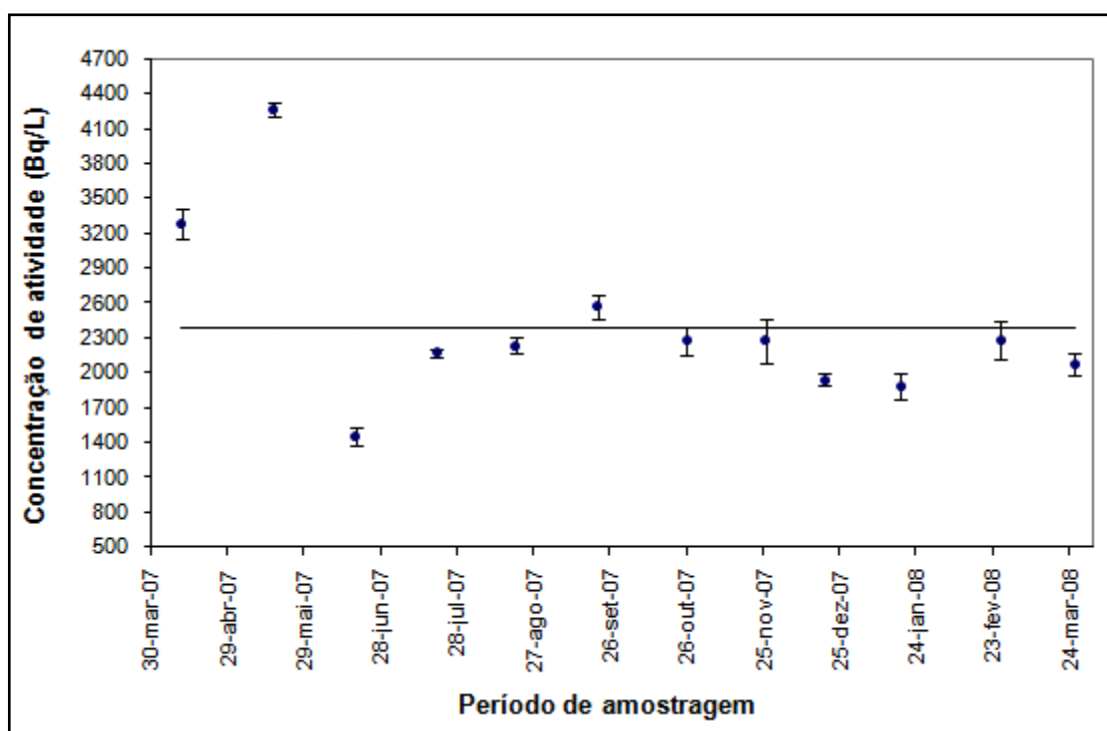


Figura 6.8– Variação da concentração de atividade de ^{222}Rn nas águas extraídas do poço 5

A figura 6.8 apresenta a variação da concentração de atividade do ^{222}Rn na

água do poço 5. A reta horizontal traçada no gráfico indica o valor médio das estimativas de concentração de atividade que é de $(2,39 \pm 0,21)$ kBq/dm³. O gráfico representado nessa figura mostra um máximo local largo entre agosto e outubro de 2007, com um valor da ordem de 2370 Bq/dm³ separando dois mínimos locais em junho de 2007 e em janeiro de 2008. As definições dos mínimos locais de junho de 2007 e de janeiro de 2008 ocorrem de forma análoga ao observado no poço 4.

Tabela 6.4 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 4

Coleta	Alíquota	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 atividade alfa	Atividade total na alíquota (Bq)	Concentração de atividade na alíquota (Bq/dm ³)	Concentração de atividade (Bq/dm ³)
1	1	1337	26,03	2312±70	1725±58	1863±123
	2	1665	27,31	2546±66	1900±57	
	3	2024	32,82	2629±110	1962±97	
2	1	6226	36,49	2488±185	1857±141	1853±91
	2	2176	25,73	2373±61	1771±52	
	3	4372	35,98	2617±67	1953±58	
3	1	3595	23,67	1456±36	1086±32	1020±135
	2	4164	31,64	1165±26	890±23	
	3	3184	31,04	1497±52	1117±46	
4	1	2006	37,62	1369±23	1022±23	1009±59
	2	2992	26,62	1430±32	1067±29	
	3	3339	34,51	1273±35	950±30	
5	1	1730	34,49	1401±35	1046±31	1083±75
	2	3132	38,55	1567±55	1169±45	
	3	4269	34,77	1384±16	1033±20	
6	1	1730	34,49	1793±63	1338±51	1348±98
	2	3132	38,55	1944±50	1451±43	
	3	4269	34,77	1683±49	1256±41	
7	1	3129	36,57	1937±65	1445±53	1421±42
	2	7216	37,62	1839±46	1372±40	
	3	2002	23,33	1937±44	1446±39	

Tabela 6.4 - Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 atividade alfa	Atividade total na alíquota (Bq)	Concentração de atividade na alíquota (Bq/dm ³)	Concentração de atividade (Bq/dm ³)
8	1	2785	30,11	1622±45	1211±38	1298±84
	2	2003	35,43	1846±42	1377±37	
	3	1623	24,44	1750±58	1306±48	
9	1	4170	33,18	1698±38	1267±34	1242±61
	2	3430	35,14	1724±61	1286±49	
	3	2975	30,27	1571±64	1172±51	
10	1	1624	24,61	1326±37	990±31	1024±101
	2	1298	28,34	1525±38	1138±33	
	3	416	33,46	1267±40	945±33	
11	1	3393	36,50	1774±59	1324±48	1279±65
	2	3078	38,34	1753±72	1308±57	
	3	551	33,48	1614±47	1205±39	
12	1	458	40,00	1786±40	1333±36	1249±98
	2	1199	33,28	1529±18	1141±22	
	3	1560	36,07	1705±48	1272±40	

Tabela 6.5 – Variação da concentração de atividade do ^{222}Rn nas águas do poço 5

Coleta	Alíquota	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 atividade alfa	Atividade total na alíquota (Bq)	Concentração de atividade na alíquota (Bq/dm ³)	Concentração de atividade (Bq/dm ³)
1	1	2552	27,81	4591±109	3426±96	3281±133
	2	3384	31,15	4359±166	3253±133	
	3	2886	22,04	4239±141	3164±116	
2	1	7099	28,44	5741±165	4284±139	4268±60
	2	4578	36,07	5799±175	4327±145	
	3	1520	32,36	5641±148	4209±127	
3	1	1517	31,00	1869±60	1395±50	1457±76
	2	496	38,58	1928±62	1439±51	
	3	2578	34,11	2067±77	1543±62	
4	1	4370	36,91	2961±97	2210±79	2171±35
	2	3991	31,26	2896±109	2161±88	
	3	1357	27,31	2871±72	2143±63	
5	1	2529	24,99	2917±76	2177±65	2237±62
	2	3214	33,39	3020±130	2254±103	
	3	4400	37,20	3081±70	2300±63	
6	1	3015	36,14	3276±93	2444±79	2567±106
	2	4692	36,66	3511±42	2620±50	
	3	5345	23,52	3533±152	2636±120	
7	1	3279	35,87	2925±75	2183±65	2264±126
	2	4409	34,04	3240±84	2417±73	
	3	4025	31,47	2978±97	2223±80	
8	1	3918	20,02	1905±104	2881±103	2274±185
	2	3293	34,39	2147±110	3332±85	
	3	2912	35,96	2118±130	2928±87	

Tabela 6.5 - Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de decaimento (minutos)	χ^2 atividade alfa	Atividade total na alíquota (Bq)	Concentração de atividade na alíquota (Bq/dm ³)	Concentração de atividade (Bq/dm ³)
9	1	1065	35,06	2518±65	1879±56	1943±55
	2	1415	18,04	2647±68	1975±58	
	3	1831	36,51	2645±67	1974±58	
10	1	2790	20,12	2490±29	1858±35	1887±112
	2	3197	33,69	2694±91	2011±72	
	3	1793	22,54	2401±62	1792±46	
11	1	1543	36,63	2799±72	2089±62	2277±163
	2	1137	36,88	3173±73	2368±65	
	3	3990	15,51	3182±106	2375±86	
12	1	2631	25,55	2638±62	1969±55	2074±92
	2	2983	35,22	2854±102	2130±83	
	3	3355	12,98	2847±84	2124±70	

A figura 6.9 apresenta a variação de temperatura ao longo do período de coleta de amostras de água nos poços 4 e 5. No poço 4 as temperaturas variaram entre 22,3°C e 24,2°C, enquanto que no poço 5 as temperaturas variaram entre 20,0°C e 23,8°C. Como no caso dos poços coletados entre julho de 2005 e agosto de 2006, as diferenças entre as temperaturas médias dos três poços e as variações em cada poço são pequenas para justificar variações de concentração de radônio na água e também não parecem ter o mesmo caráter cíclico anual das concentrações de atividade.

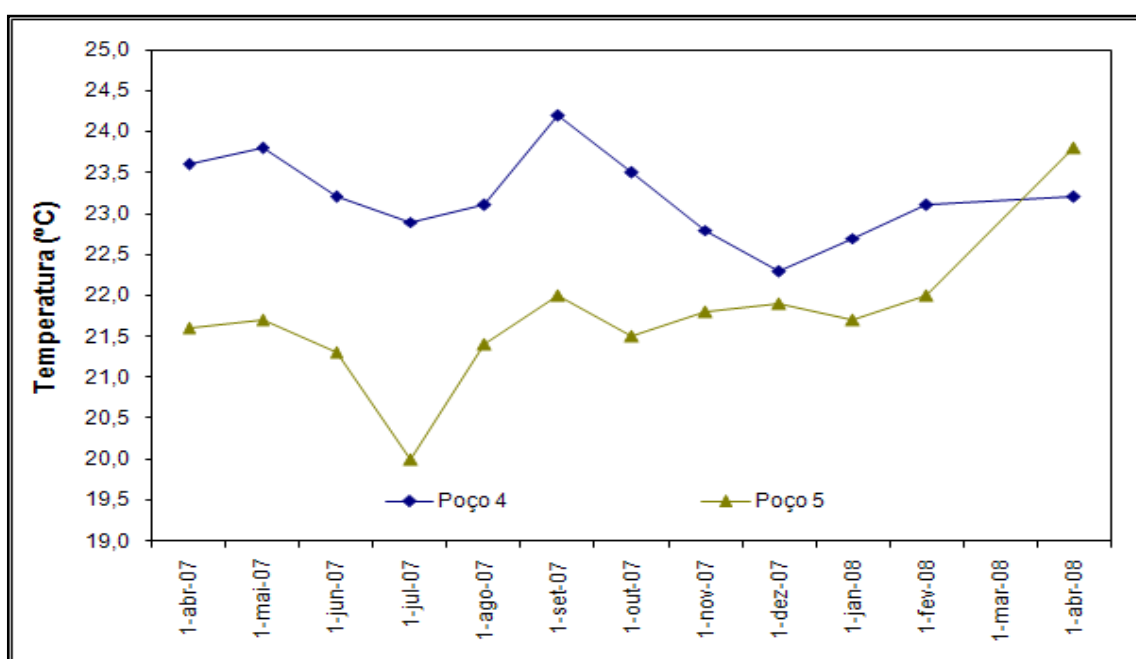


Figura 6.9 – Variação de temperatura observada nos poços 4 e 5 entre abril de 2007 e abril de 2008

A figura 6.10 apresenta a variação de pH ao longo do período de coleta de amostras de água nos poços 4 e 5. A água extraída do poço 4 tem um caráter levemente ácido apresentando valores de pH entre 5,8 e 6,5. As variações observadas no pH não apresentam um caráter cíclico claro e as variações observadas são pequenas para justificar variações significativas na concentração de atividade do radônio. A água, extraída do poço 5, apresentou valores de pH variando entre 5,6 e 7,2 com maiores flutuações ao longo do ano de amostragem. Também

nesse caso as variações de pH não devem justificar as variações de concentração de atividade do radônio.

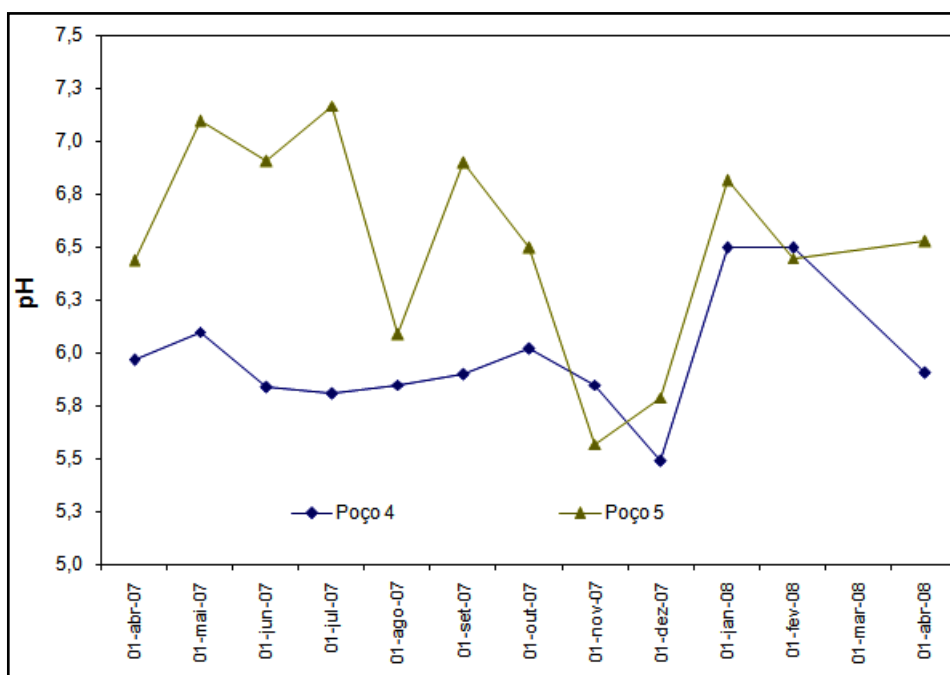


Figura 6.10 – Variação de pH observada nos poços 4 e 5 entre abril de 2007 e abril de 2008

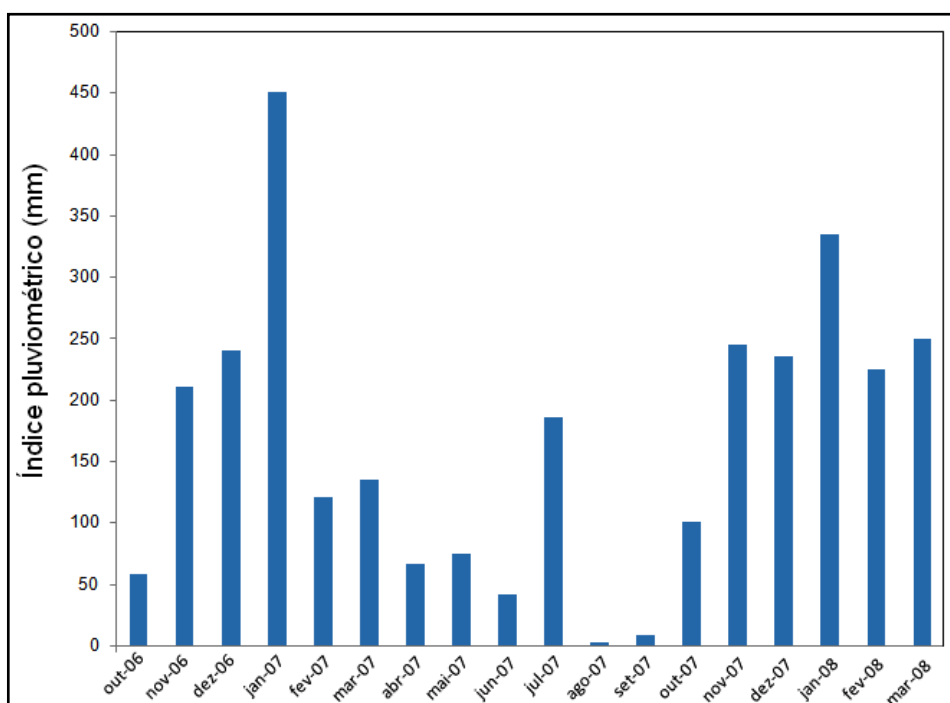


Figura 6.11 - Variação da precipitação na região de Amparo entre outubro de 2006 e março de 2008

A figura 6.11 apresenta a variação mensal da precipitação de chuvas no período entre outubro de 2006 a março de 2008, no município de Amparo, cerca de 20 km a nordeste do poço 4 e 30 km, aproximadamente, na mesma direção do poço 5. Nessa figura, se pode observar fortes precipitações (1113 mm) entre novembro de 2006 e março de 2007, um período de menores precipitações entre abril de 2007 e outubro de 2007 e novas fortes precipitações (1255 mm) entre novembro de 2007 e março de 2008.

É importante notar que julho de 2007 apresentou uma precipitação maior do que esperado, seguida de uma estiagem significativa em agosto e setembro. Essa variação está refletida na variação da concentração de atividade do radônio, tanto no poço 4, quanto no poço 5.

As observações indicam de forma clara que, nos cinco poços analisados, a concentração de atividade do radônio reflete variações da precipitação de chuva na superfície. O intervalo de tempo para que as variações na precipitação se reflitam na concentração de atividade de radônio é da ordem de dois a três meses, indicando que os aquíferos fraturados que foram investigados são rapidamente afetados por variações nas condições de superfície.

6.2 O comportamento das concentrações de atividade de ^{226}Ra

As concentrações de atividade de ^{226}Ra nas águas subterrâneas extraídas dos poços 1, 2, 3, 4 e 5 foram estimadas utilizando-se a metodologia descrita no capítulo 4. A tabela 6.6 apresenta os dados obtidos com a água extraída do poço 1. A tabela identifica as alíquotas de cada amostra, o intervalo de tempo durante o qual radônio foi acumulado no frasco de emanção e o intervalo de tempo entre a transferência do radônio acumulado para o detector e o início da contagem alfa. A tabela 6.6 apresenta também o valor do χ^2_{obs} , correspondente aos ajustes das contagens alfa à lei da desintegração radioativa (equação 5.5) e a atividade total do ^{226}Ra precipitado de cada alíquota de água. Por último a tabela apresenta a concentração de atividade de rádio na água subterrânea, já corrigida para levar em consideração a eficiência do processo de extração do rádio da água subterrânea. A

incerteza da concentração de atividade corresponde a um erro padrão da média. A repetibilidade média das medidas de concentração de rádio é, no caso do poço 1, de $(0,06 \pm 0,04)$. O número esperado de valores de χ^2_{obs} fora do intervalo $(11,7 < \chi^2_{obs} < 38,1)$ fica entre 1 e 2, e o número realmente observado foi um.

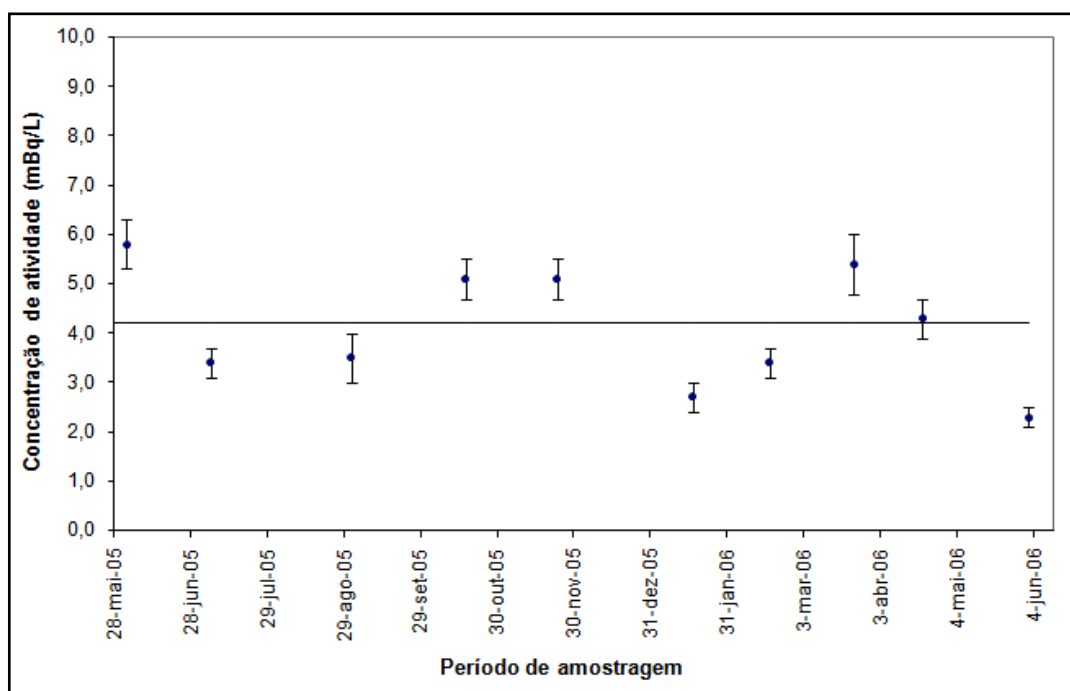


Figura 6.12 - Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 1

A figura 6.12 apresenta a variação da concentração de atividade de ^{226}Ra na água extraída do poço 1 entre junho de 2005 e junho de 2006. O valor médio da concentração de atividade de rádio durante o período, indicada pela reta horizontal foi de $(4,2 \pm 0,4)$ mBq/dm³, sendo que a incerteza corresponde a um erro padrão da média. Embora as variações em torno desse valor médio sejam menores do que as observadas no caso do radônio, elas não representam apenas flutuações aleatórias em torno do valor médio. Por outro lado, o padrão de flutuação não parece corresponder ao padrão de precipitação de chuvas apresentado na figura 6.6.

A figura 6.13 apresenta as variações de temperatura, ao longo do período de amostragem, da água no instante da coleta de amostras e na boca dos poços 1, 2 e 3. A temperatura da água coletada no poço 1 variou de 23° C e 25° C sendo essa

variação muito pequena para justificar variações significativas na concentração de atividade do rádio.

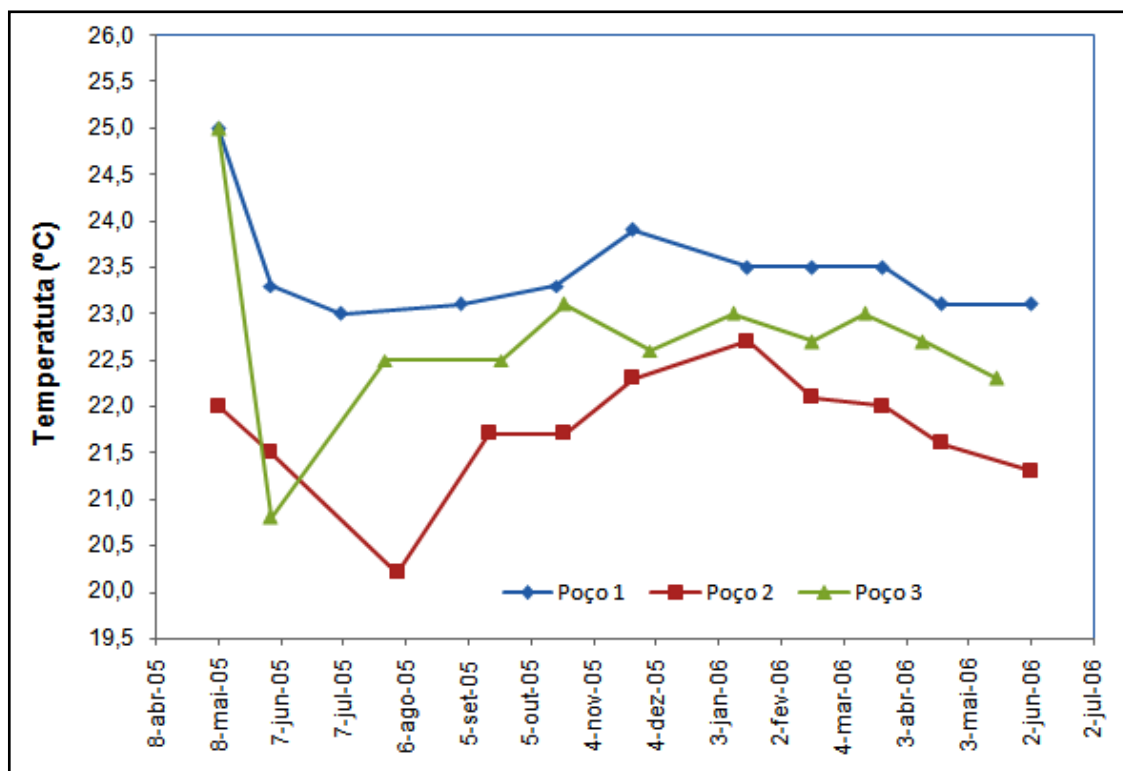


Figura 6.13 – Variação de temperatura observada nos poços 1, 2, e 3 entre maio de 2005 e julho de 2006

Tabela 6.6 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 1

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
1	1	31542	240	31,38	77,1±9,1	4,7±0,4
	2	41518	240	15,34	84,6±7,8	
	3	45947	240	19,89	81,2±8,0	
2	1	14481	1208	32,61	97,9±9,8	5,8±0,5
	2	22984	240	13,09	98,8±7,1	
	3	50794	240	21,43	100,9±8,7	
3	1	51894	274	35,92	55,4±8,5	3,4±0,3
	2	56187	300	32,00	58,7±8,4	
	3	26067	240	31,17	61,7±8,5	
4	1	92142	240	28,21	54,4±8,4	3,5±0,3
	2	34310	240	16,64	64,2±7,8	
	3	24125	240	17,84	59,5±7,7	
5	1	11792	240	28,81	91,6±9,8	5,1±0,4
	2	129645	240	31,10	85,2±8,7	
	3	19906	240	10,56	87,3±7,5	
6	1	90823	240	21,65	87,9±8,2	5,1±0,4
	2	52131	240	18,85	92,3±8,0	
	3	61959	240	15,25	85,0±7,6	

Tabela 6.6 – Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
7	1	145140	240	26,60	50,4±9,9	2,7±0,3
	2	143465	240	30,55	41,8±8,2	
	3	146615	240	18,16	48,1±7,2	
8	1	148243	240	23,71	55,9±7,7	3,4±0,3
	2	149667	240	21,99	61,5±7,9	
	3	150678	240	16,11	57,1±9,2	
9	1	22962	240	14,55	78,2±6,9	5,4±0,6
	2	21655	240	20,79	105,1±9,8	
	3	19871	240	15,06	96,4±7,4	
10	1	64722	240	12,59	69,8±6,9	4,3±0,4
	2	61828	240	33,31	72,5±8,6	
	3	60435	240	31,56	78,2±10,1	
11	1	63100	240	39,49	38,3±7,0	2,3±0,2
	2	64645	240	31,54	41,2±8,0	
	3	66032	240	21,35	40,0±9,5	

Tabela 6.7 – Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas do poço 2

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
1	1	94861	240	19,69	63,7±9,5	3,7±0,3
	2	100599	240	25,62	65,8±6,6	
	3	96115	240	19,16	60,4±7,7	
2	1	89221	240	31,41	159,3±9,2	9,2±1,0
	2	73660	240	19,49	175,6±8,6	
	3	76195	240	13,11	140,1±8,0	
3	1	88065	240	30,87	77,1±10,1	4,7±0,4
	2	59190	240	28,93	85,1±8,2	
	3	89387	240	17,14	80,1±6,2	
4	1	49091	240	24,74	107,6±6,9	6,3±0,5
	2	57773	240	15,25	103,5±8,1	
	3	50320	240	36,41	111,5±10,5	
5	1	83607	240	19,89	170,7±7,2	9,6±0,8
	2	84983	240	33,67	161,4±8,7	
	3	86589	240	15,29	164,2±7,7	
6	1	69357	240	31,28	63,2±7,8	4,2±0,5
	2	70630	240	13,34	72,6±7,0	
	3	72189	240	23,16	81,1±9,8	

Tabela 6.7 – Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
7	1	100993	240	37,02	112,6±9,1	6,9±0,6
	2	102496	240	18,34	123,9±7,5	
	3	99520	240	14,82	117,1±6,9	
8	1	50868	240	21,06	187,1±8,5	9,8±1,0
	2	108130	240	19,28	146,7±9,7	
	3	106515	240	15,30	169,6±8,2	
9	1	40170	240	18,42	80,8±7,1	4,8±0,4
	2	21431	240	13,69	82,1±6,2	
	3	38680	240	21,28	84,2±7,5	
10	1	31530	240	22,91	172,7±8,8	9,8±0,8
	2	30148	240	14,56	169,2±7,4	
	3	27235	240	12,51	165,3±6,7	
11	1	40186	240	29,68	109,5±7,3	6,3±0,5
	2	24394	240	23,70	103,9±8,3	
	3	32875	240	12,24	112,9±9,1	

Tabela 6.8 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 3

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
1	1	94861	240	19,69	63,7±9,5	3,7±0,3
	2	100599	240	25,62	65,8±6,6	
	3	96115	240	19,16	60,4±7,7	
2	1	17048	240	23,74	41,8±7,7	2,3±0,2
	2	18675	240	20,51	37,4±9,8	
	3	19987	240	18,16	39,4±7,8	
3	1	18716	240	14,01	30,7±7,6	2,0±0,2
	2	21638	240	13,68	33,1±9,4	
	3	31582	240	20,14	39,4±9,5	
4	1	33340	240	32,52	48,5±10,2	2,5±0,3
	2	31899	240	32,40	39,6±7,8	
	3	30218	240	23,06	41,3±8,3	
5	1	50563	240	40,65	51,0±10,8	3,0±0,3
	2	47657	240	29,75	55,7±10,0	
	3	48923	240	18,48	47,2±6,2	
6	1	138313	240	20,76	47,4±7,9	2,8±0,2
	2	49003	240	22,21	45,1±9,6	
	3	50395	240	31,38	49,7±7,8	

Tabela 6.8 – Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
7	1	47723	240	18,33	77,5±7,9	4,5±0,4
	2	49199	240	23,71	81,6±8,2	
	3	50468	240	23,70	71,4±6,7	
8	1	54947	240	30,36	37,5±10,1	2,2±0,2
	2	51823	240	12,93	39,9±9,2	
	3	39031	240	21,31	35,3±7,6	
9	1	23073	240	29,53	71,8±8,5	4,2±0,4
	2	151224	240	20,54	68,8±6,4	
	3	149585	240	15,93	74,8±9,2	
10	1	34447	240	21,11	90,6±9,8	5,5±0,5
	2	33036	240	27,54	94,9±8,6	
	3	31653	240	20,71	97,2±6,8	
11	1	31619	240	21,32	62,4±9,7	3,8±0,3
	2	20175	240	37,16	67,8±10,7	
	3	18563	240	33,52	64,8±8,9	

A figura 6.14 apresenta as variações de pH das águas dos poços analisados no mesmo período. No caso das águas do poço 1 o pH variou entre 4,85 e 6,65, indicando o caráter ácido dessas águas. Não há uma dependência aparente entre as variações desse parâmetro com as concentrações de atividade do rádio.

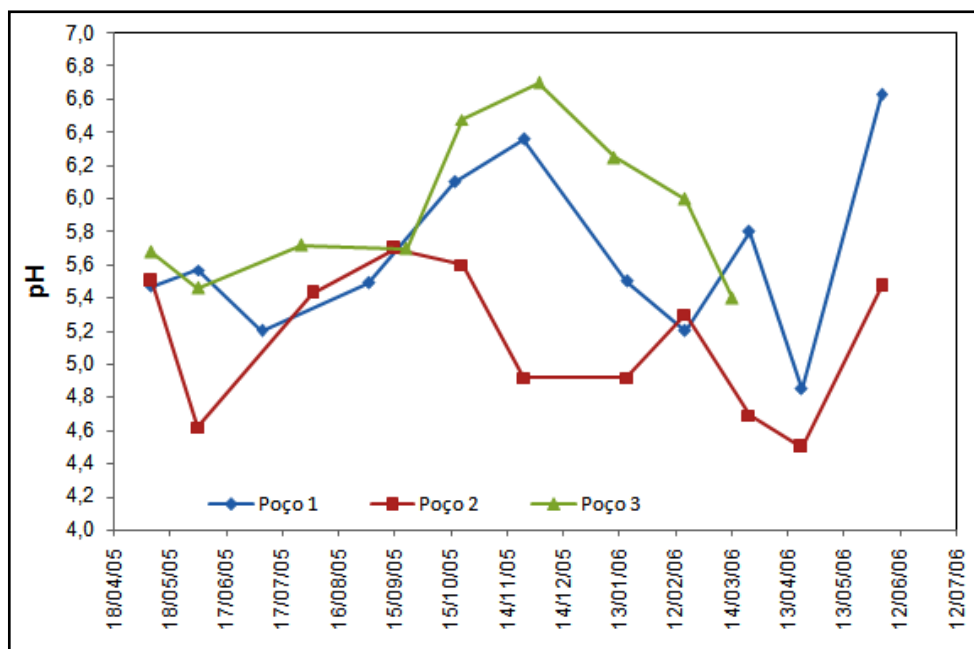


Figura 6.14 – Variação de pH observada nos poços 1, 2 e 3 entre abril de 2005 e junho de 2006

As figuras 6.15 e 6.16 apresentam a variação das concentrações de atividade de rádio nos poços 2 e 3, respectivamente, durante o período de amostragem. O valor médio da concentração de atividade de rádio durante o período, indicada pela reta horizontal foi de $(6,9 \pm 0,7)$ mBq/dm³, no caso do poço 2 e de $(3,3 \pm 0,6)$ mBq/dm³, no caso do poço 3. Como no caso do poço 1, embora as variações em torno dos valores médios sejam pequenas, elas não representam apenas flutuações aleatórias em torno do valor médio. Também nesses dois casos, os padrões de flutuação não parecem corresponder ao padrão de precipitação de chuvas apresentado na figura 6.6.

As tabelas 6.7 e 6.8 apresentam os dados obtidos com as águas extraídas dos poços 2 e 3, respectivamente. No caso do poço 2, a repetibilidade média das medidas de concentração de radio é $(0,06 \pm 0,04)$ e no caso do poço 3 e de $(0,07 \pm$

0,03). O número esperado de valores de χ^2_{obs} fora do intervalo ($11,7 < \chi^2_{obs} < 38,1$) fica entre 1 e 2 nos dois casos e nenhum valor fora desse intervalo foi observado seja no poço 2, seja no poço 3.

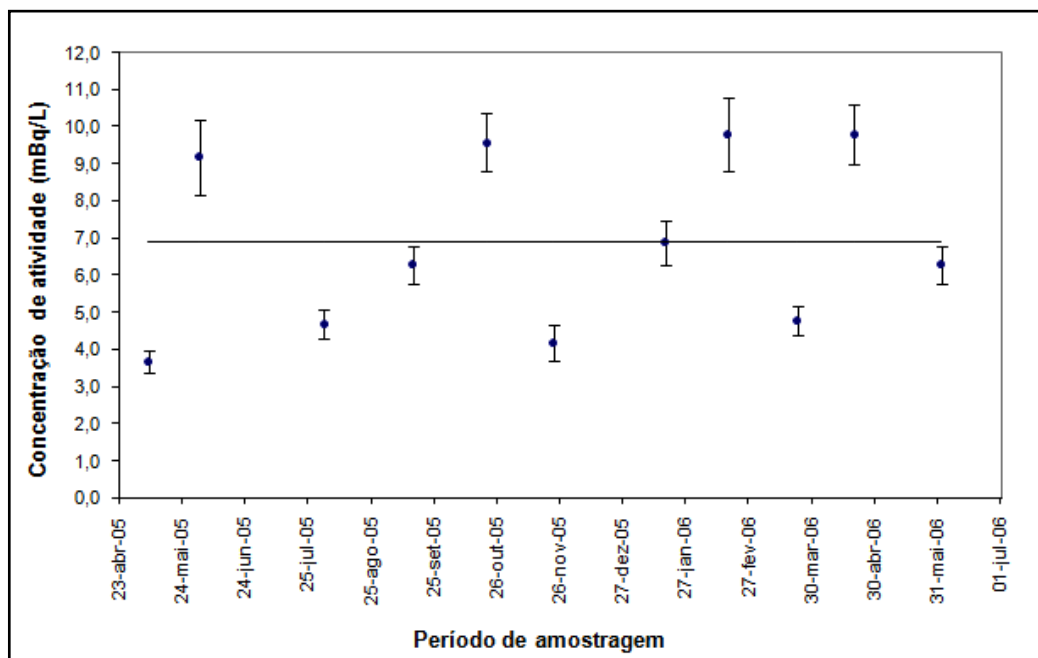


Figura 6.15 - Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 2

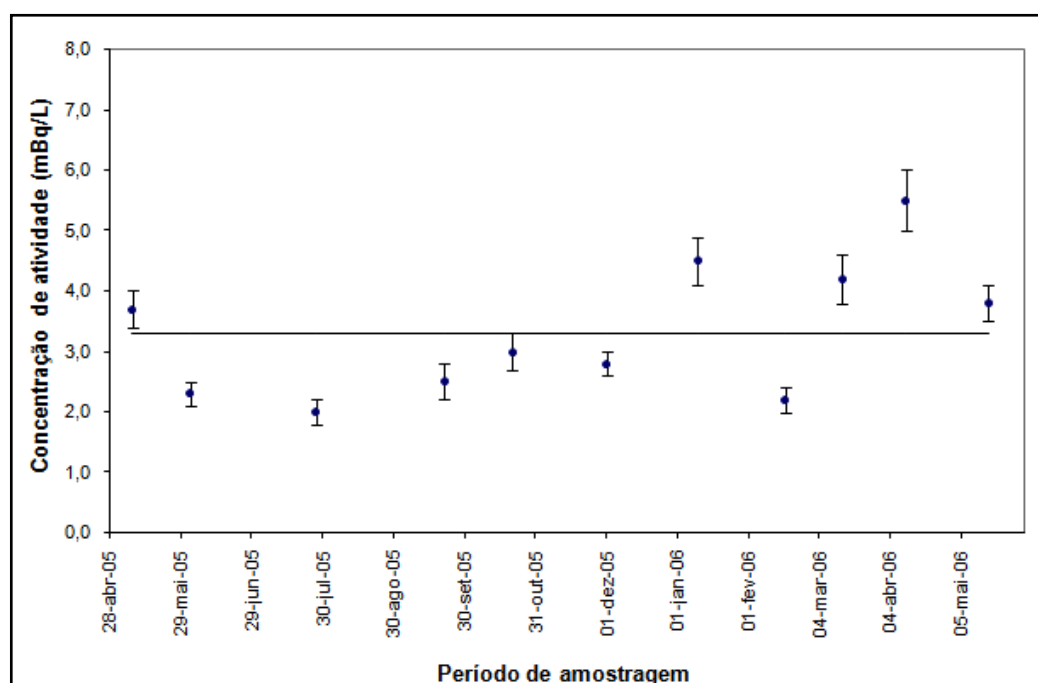


Figura 6.16 - Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 3

As figuras 6.17 e 6.18 apresentam a variação das concentrações de atividade de rádio nos poços 4 e 5, respectivamente, durante o período de observação e coleta de amostras. O valor médio da concentração de atividade de rádio durante o período, indicada pela reta horizontal foi de $(13,0 \pm 0,5)$ mBq/dm³, no caso do poço 4, e de (39 ± 3) mBq/dm³, no caso do poço 5.

No poço 4, as variações da concentração de atividade em torno do seu valor médio são pequenas, mas ainda assim, elas não representam apenas flutuações aleatórias em torno do valor médio. No caso do poço 5, a variação em torno do valor médio é significativa. Nos dois casos, os padrões de flutuação não parecem corresponder ao padrão de precipitação de chuvas apresentado na figura 6.11, bem como não apresentam dependência com a temperatura e o pH da água.

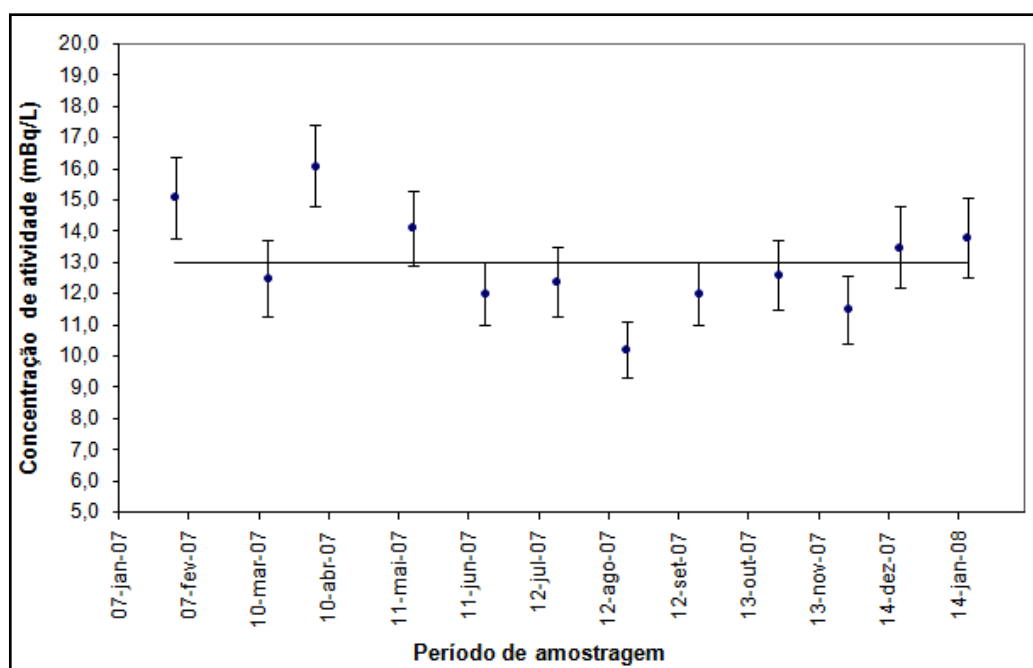


Figura 6.17 - Variação da concentração de atividade de ²²⁶Ra nas águas extraídas do poço 4

As tabelas 6.9 e 6.10 apresentam os dados obtidos com as águas extraídas dos poços 4 e 5, respectivamente. No caso do poço 4, a repetibilidade média das medidas de concentração de rádio é $(0,06 \pm 0,02)$ e no caso do poço 5 e de $(0,03 \pm 0,01)$. O número esperado de valores de χ^2_{obs} fora do intervalo $(11,7 < \chi^2_{obs} < 38,1)$

fica entre 1 e 2. No caso do poço 4 nenhum valor ficou fora desse intervalo e no caso do poço 5 um valor de χ^2_{obs} ficou fora desse intervalo.

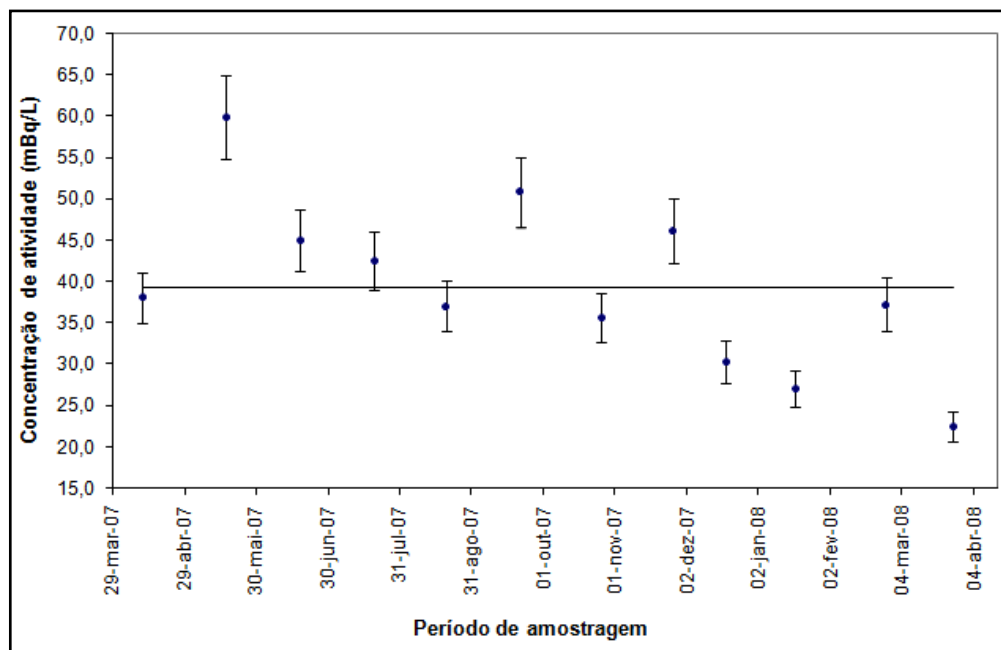


Figura 6.18 - Variação da concentração de atividade de ^{226}Ra nas águas extraídas do poço 5

O conjunto de concentrações de atividade de rádio, obtidos nos cinco poços analisados, mostram que a precisão relativa com que esses valores são obtidos é essencialmente a mesma para todos os poços ($\sim 0,06$), com a exceção do poço 5 que possui uma concentração de atividade média bem maior do que os demais e possui precisão relativa de 0,03. Em todos os poços, a variação da concentração de atividade flutua significativamente em torno do valor médio calculado no período de amostragem. Não há, aparentemente, nexos entre as variações de concentração de atividade de rádio e as variações de temperatura e de pH, medidas na boca do poço.

Tabela 6.9 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 4

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
1	1	44594	240	12,48	258,9±8,5	15,1±1,3
	2	43120	240	13,16	273,4±8,2	
	3	41549	240	23,96	246,4±10,0	
2	1	28895	240	27,45	192,0±9,6	12,5±1,2
	2	30300	240	25,38	233,6±8,9	
	3	31750	240	13,74	218,2±7,5	
3	1	15870	240	13,23	276,1±8,5	16,0±1,3
	2	17332	240	13,51	285,2±11,1	
	3	18857	240	29,27	266,3±12,5	
4	1	73562	240	37,50	258,0±7,4	14,0±1,2
	2	20129	240	18,20	234,7±9,1	
	3	21830	240	16,76	230,8±10,6	
5	1	14512	240	11,99	196,0±8,0	12,0±1,0
	2	15995	240	14,26	213,6±10,3	
	3	17468	240	35,98	209,0±11,1	
6	1	20365	240	18,83	225,8±8,1	12,4±1,1
	2	17163	240	26,52	215,8±9,9	
	3	18815	240	20,45	198,5±10,6	

Tabela 6.9 – Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
7	1	38925	240	15,65	179,1±8,6	10,2±0,9
	2	49035	240	20,72	178,4±8,8	
	3	36012	240	26,98	167,2±8,2	
8	1	27413	240	25,21	208,8±9,8	12,0±1,0
	2	25820	240	14,66	210,0±7,4	
	3	28700	240	10,12	198,9±7,1	
9	1	28892	240	30,43	208,0±8,8	12,6±1,1
	2	27570	240	17,50	220,2±9,1	
	3	26065	240	33,07	224,0±11,9	
10	1	51995	240	28,55	196,2±11,0	11,5 ±1,1
	2	50535	240	16,21	212,8±8,8	
	3	48943	240	27,72	181,9±8,0	
11	1	31722	240	32,40	214,5±9,4	13,5±1,3
	2	32995	240	14,07	252,4±8,6	
	3	34514	240	19,19	231,9±9,4	
12	1	11544	240	22,21	233,5±10,7	13,8±1,3
	2	12955	240	24,55	256,7±10,6	
	3	14371	240	22,97	221,8±9,0	

Tabela 6.10 – Variação da concentração de atividade do ^{226}Ra nas águas do poço 5

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
1	1	23010	240	12,48	650,3±16,1	38,1±3,1
	2	20240	240	13,16	669,9±20,2	
	3	21565	240	23,96	647,8±16,7	
2	1	27477	240	27,45	1073,2±26,8	59,9±5,0
	2	28920	240	25,38	1016,3±30,0	
	3	28910	240	13,74	1003,7±32,5	
3	1	40087	240	13,23	790,9±20,2	45,0±3,7
	2	31673	240	13,51	772,5±16,7	
	3	33192	240	29,27	758,4±23,5	
4	1	30075	240	37,50	721,1±20,1	42,6±3,5
	2	23135	240	18,20	741,0±21,3	
	3	28678	240	16,76	738,6±25,1	
5	1	14580	240	11,99	625,7±17,8	37,1±3,0
	2	30308	240	14,26	647,6±18,5	
	3	25650	240	35,98	640,7±20,0	
6	1	11848	240	18,83	887,5±22,0	50,9±4,2
	2	27305	240	26,52	859,7±23,0	
	3	15607	240	20,45	879,8±22,8	

Tabela 6.10 – Continuação

Coleta	Alíquota	Tempo de acumulação (min)	Tempo para iniciar a contagem (min)	χ^2 da atividade alfa	Atividade total de ^{226}Ra (mBq)	Concentração de atividade de ^{226}Ra (mBq/L)
7	1	13117	240	30,43	620,0±21,3	35,7±3,0
	2	11289	240	34,56	591,2±19,8	
	3	12866	240	24,36	630,8±23,7	
8	1	27472	240	20,60	766,0±19,8	46,2±3,9
	2	28560	240	35,29	820,1±23,0	
	3	13085	240	27,97	796,3±24,3	
9	1	23294	240	21,33	528,6±15,0	30,4±2,6
	2	17166	240	19,67	500,6±16,0	
	3	14512	240	12,21	539,5±18,5	
10	1	12885	240	20,11	457,0±12,6	27,1±2,2
	2	11575	240	12,79	471,1±17,0	
	3	20032	240	30,49	467,7±19,6	
11	1	15940	240	42,22	612,0±18,0	37,3± 3,2
	2	17345	240	32,86	670,6±20,8	
	3	11532	240	27,04	642,1±22,7	
12	1	23124	240	30,99	384,4±13,4	22,6±1,8
	2	13438	240	13,38	393,5±13,5	
	3	20341	240	32,22	388,4±18,0	

6.3 Dependência das concentrações de atividade do ^{222}Rn e do ^{226}Ra com o tipo de rocha do aquífero fraturado

As concentrações de atividade de ^{222}Rn e de ^{226}Ra medidas nas águas subterrâneas dos cinco poços observados apresentaram valores muito variáveis. A figura 6.19 apresenta uma comparação desses valores. Nem todos os valores de concentração de atividade medidos foram utilizados na construção dessas figuras, uma vez que, em algumas ocasiões não foram medidas concentrações de ^{222}Rn e de ^{226}Ra nas mesmas alíquotas de água. No caso dos poços perfurados sobre os granitos do batólito de Morungaba, poço 4³ e poço 5, as concentrações de atividade de ^{222}Rn e de ^{226}Ra são as mais altas observadas e se apresentam bem individualizados na figura. É importante notar que as ordenadas estão em escala logarítmica, a unidade das ordenadas é Bq/dm^3 e a unidade das abscissas é mBq/dm^3 . A distinção entre os dois poços é feita tanto pelas concentrações de atividade de ^{226}Ra , quanto pelas concentrações de atividade de ^{222}Rn . No caso dos poços perfurados sobre o embasamento metamórfico a distinção entre os valores provenientes dos poços 1, 2 e 3 é menos evidente.

A Figura 6.20 apresenta uma comparação entre as concentrações de atividade de ^{222}Rn e de ^{226}Ra nas águas extraídas dos poços perfurados no embasamento metamórfico. Note que nessa figura, tanto ordenadas quanto abscissas estão em escala linear. A figura mostra que, grosso modo, pode se separar os dados em três conjuntos diferentes, mas que apresentam superposição. Os poços 1 e 3 apresentam concentrações de atividade de ^{226}Ra no mesmo intervalo. Nesses poços, as atividades de ^{222}Rn mais altas no poço 1. O poço 2 apresenta concentrações de atividade de rádio mais altas do que as dos poços 1 e 3 e concentrações de ^{222}Rn mais baixas.

³ O poço 4 foi perfurado sobre a lente de rochas metamórficas de Joaquim Egídio, mas corta essencialmente apenas um granito e está localizado muito próximo ao contato da lente com o plúton Jaguari. Por essa razão, está sendo admitido que o granito pertença ao batólito de Morungaba.

Uma comparação entre as concentrações de atividade do ^{222}Rn e do ^{226}Ra em todas as águas subterrâneas analisadas mostra um forte desequilíbrio na razão de atividade $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$. O poço 1 apresenta razões $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ entre $1,1 \times 10^4$ e $2,8 \times 10^4$, enquanto que o poço 2 apresenta essas razões no intervalo entre $2,1 \times 10^3$ e $7,1 \times 10^3$ e o poço 3 apresenta razões $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ variando de $6,0 \times 10^3$ a $2,3 \times 10^4$. Nesse conjunto de razões $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$, observados nos poços perfurados sobre o embasamento metamórfico, os valores mais altos são observados no poço 1 que corta um granito porfirítico, que não aflora na superfície no local do poço. Os valores mais baixos correspondem a rochas metamórficas, granito-gnaiss no caso do poço 1 e gnaiss no caso do poço 3. No poços 4 e 5, as razões $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ variaram, respectivamente, entre $7,4 \times 10^4$ e $1,2 \times 10^5$ e entre $3,2 \times 10^4$ e $9,2 \times 10^4$.

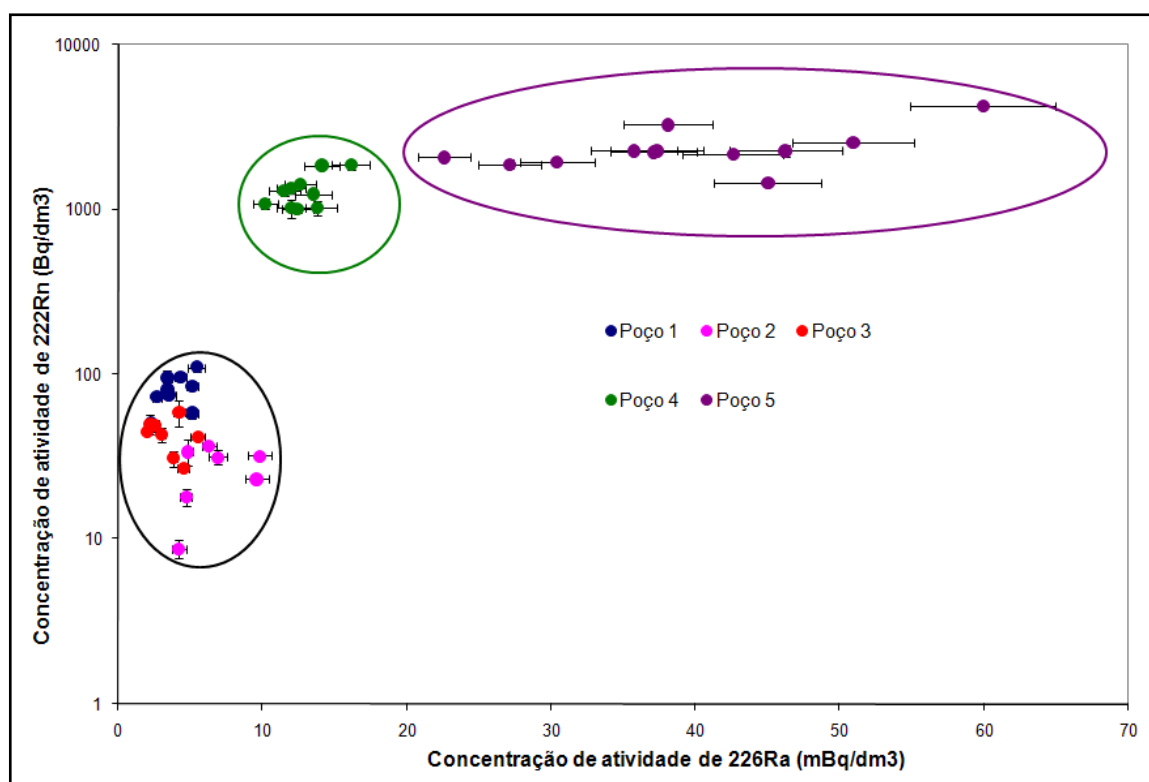


Figura 6.19 - Comparação entre os valores de concentração de atividade de ^{222}Rn e ^{226}Ra

Um conjunto de dados adicionais para a região estudada foi recentemente publicado por Lucas, Ribeiro e Oliveira (2009). Esses dados se restringem a

concentrações de radônio medidas em dois poços, perfurados sobre o embasamento metamórfico, na cidade de Amparo. Um dos poços, com 52 metros de profundidade, corta um gnaiss e outro, com 117 metros de profundidade, corta um granito-gnaiss. Os valores observados apresentam, como no caso das concentrações de radônio relatados neste trabalho, uma evidente dependência com a precipitação de chuva. A água extraída do poço mais profundo apresentou uma concentração de atividade média de radônio de 374 Bq/dm^3 e o mais raso apresentou uma concentração de atividade de 1275 Bq/dm^3 . Embora esse segundo poço seja perfurado em uma rocha metamórfica, a concentração de atividade de radônio na sua água se aproxima dos valores observados nas rochas do batólito.

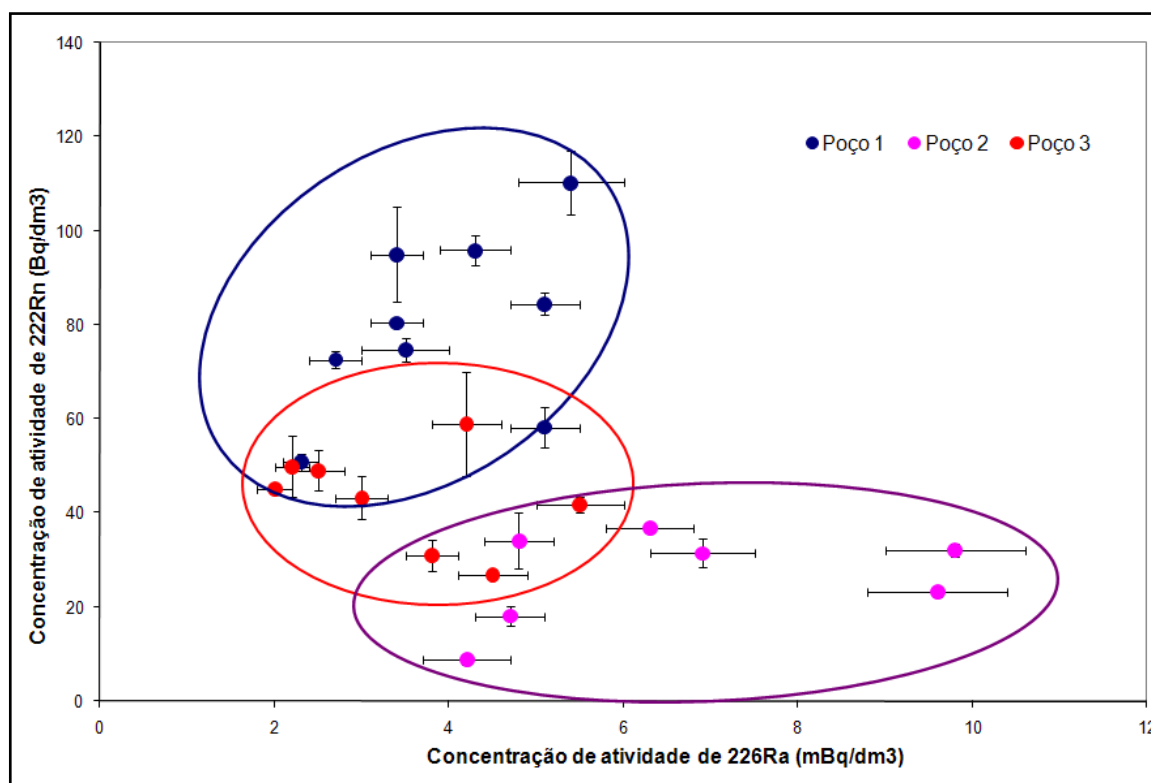


Figura 6.20 - Comparação entre as concentrações de atividade de ^{222}Rn e de ^{226}Ra nas águas extraídas dos poços perfurados no embasamento metamórfico

7. CONCLUSÃO

A concentração de atividade do radônio, nos aquíferos fraturados rasos da região do batólito de Morungaba incluindo as rochas metamórficas encaixantes, responde com um atraso da ordem de dois a três meses a variações na precipitação de chuvas. A concentração de rádio, por sua vez, parece não ser afetada por esse fator. Por outro lado, as concentrações de atividade do ^{222}Rn e do ^{226}Ra apresentam uma dependência com o tipo de rocha onde a fratura se desenvolve. As rochas graníticas do batólito de Morungaba apresentam valores de concentração de atividade superiores às concentrações observadas nas rochas metamórficas encaixantes, essencialmente gnaisses e granito-gnaisses. As razões de atividade $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ também parecem depender do tipo de rocha onde a fratura se desenvolveu. Os valores mais elevados das razões de atividade $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ são observados nos granitos do batólito.

A concentração de atividade do ^{222}Rn , no entanto, apresenta um grande intervalo de variação mesmo para fraturas em rochas semelhantes. Considerando apenas os dados disponíveis para as rochas encaixantes, a concentração de atividade de radônio, incluindo os dados de Lucas, Ribeiro e Oliveira (2009), varia de 26 Bq/dm^3 a 1275 Bq/dm^3 para poços localizados a uma distância de, no máximo, 34 km. Variações grandes na concentração de atividade de radônio têm sido relatadas na literatura, mesmo em fraturas interceptadas por poços perfurados em áreas muito mais restritas do que o entorno do batólito de Morungaba e sobre uma única intrusão. A região do granito, Pines Peak, localizado no Colorado é um exemplo (Folger et al., 1994,1996).

As concentrações de atividade do rádio e do radônio na água contida em fraturas parecem depender de uma série de fatores, além do tipo de rocha que abriga a fratura. Fatores como a distribuição de rádio ao longo das paredes da fratura, o estado de alteração dessas paredes, a eficiência de transferência do rádio e do radônio para a água, a abertura das fraturas e da velocidade de percolação da água, devem exercer um controle significativo sobre a concentração de atividade do rádio e, sobretudo, do radônio. Existem evidências dessa influência relatadas na

literatura. A maior parte desses fatores, no entanto, depende do conjunto particular de fraturas que são interceptadas por um poço de produção de água (Lawrence et al.,1992; Folger et al.,1996).

Os resultados apresentados nesta tese parecem confirmar que as concentrações de atividade de ^{226}Ra e, sobretudo de ^{222}Rn são características de cada poço, a ponto de se poder individualizar os dados provenientes de cada um em um diagrama cartesiano onde as concentrações de ^{222}Rn são representadas no eixo das ordenadas e as de ^{226}Ra são representadas nos eixo das abscissas. As concentrações de atividade são, aparentemente, controladas por características locais, particulares da fratura. No caso dos poços aqui estudados, não se dispôs, infelizmente, de dados que permitissem a investigação da influência desses fatores.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AIETA, E. M.; SINGLEY, J. E.; TRUSSELL, A. R.; THORBJARNARSON, K. W.; MCGUIRE, M. J. Radionuclides in drinking water: An overview. **J Am. Water Works Assoc.**, 144-153, 1987.

ANDRADE, T. C. Q., 1998, **Taxa de produção de calor radiogênico no embasamento da Bacia do Paraná**. PhD Thesis, Instituto Astronômico e Geofísico da Universidade de São Paulo, São Paulo, Brazil.

ASIKAINEN, M., KAHLOS, H. Natural radioactivity of drinking water in Finland. **Health Physics**, 39, 77- 83, 1980.

BALL, T.K., CAMERON, D.G., COLMAN, T.B., ROBERTS, P.D. Behaviour of radon in the geological environment: A review. **Quarterly Journal of Engineering Geology**, 24, 169-182, 1991.

BENES, P., 1990, Speciation procedures. In: INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **The environmental behaviour of radium**. Vienna 1990, volume 1, 3-1. (IAEA technical report series, 310).

BONOTTO D.M., ANDREWS J.N. The transfer of radon and parent nuclides ^{238}U and ^{234}U from soils of Mebdip hills area, England, to the water phase. **J. Geochem. Explor.** 66, 255–268, 1999.

BRUTSAERT, W. F., NORTON, S. A., HESS C. T., WILLIAMS J. S. Geologic and hydrologic factors controlling radon-222 in ground water in Maine. **Ground Water**, 19, 407 - 417, 1981.

CAVALCANTE, I. N.; SANTIAGO, M. M. F.; REBOUÇAS, A. C. Hidroquímica dos sistemas aquíferos, manto de intemperismo e meio fraturado da região de Atibaia, Estado de São Paulo. **Revista de Geologia**, 11, 31-39, 1998.

CADIGAN, R.A. & FELMLEE, J. K. Radioactive springs geochemical data related to uranium exploration. **J. Geochem. Explor.**, 8: 381-395, 1977

CURRIE, L. A. Limits for qualitative detection and quantitative determination-Application to radiochemistry. **Anal. Chem.**, v. 40, 586-593, 1968.

DIÁRIO OFICIAL DA UNIÃO. **Código de águas minerais**. 20/08/1945. (Decreto-lei nº 7841).

DILLON, M. E., CARTER, G. L., ARORA, R., KAHN, B, Radon concentrations in ground water of the Georgia Piedmont. **Health Physics**, 60, 229-236,1991.

FLEISCHER, R.L., RAABE, O.G. Recoiling alpha-emitting nuclei: mechanisms for uranium series disequilibrium. **Geochim. Cosmochim. Acta** (42), 973-978, 1978.

FLEISCHER, R.L.,(1997) **Radon: overview of properties, origin and transport**. In: Radon Measurements by Etched Track Detectors, Ilic and Durrani (Eds.),1-20, World Scientific Publishing, Singapore.

FOLGER, P. F., NYBERG, P., POETER, E. Relations between ^{222}Rn dissolved in ground water supplies and indoor ^{222}Rn concentrations in some Colorado Front Range houses. **Health Physics**, 67 (3), 244-252, 1994.

FOLGER, P. F., POETER, E., WANTY, R. B., FRISHMAN, D., DAY, W., Controls on ^{222}Rn variations in a fractured crystalline rock aquifer evaluated using aquifer tests and geophysical logging. **Ground Water**, 34(2), 250-261, 1996.

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

HESS, C.T., MICHEL, J. HORTON, T.R., PRICHARD, H.M., CONIGLIO, W.A. The occurrence of radioactivity in public water supplies in the United States. **Health Physics Society**, Oxford, Pergamon Press, 48 (5), 553-586, 1985.

IVANOVICH, M.; HARMON, R.S.(1992), **Uranium series disequilibrium; Applications to environmental problems**. 2^o Ed. Oxford. Claredon Press.

JIANG, H., HOLTZMAN. RB. Simultaneous determination of ^{224}Ra , ^{226}Ra and ^{228}Ra im large volumes of well waters, **Health Physics**, 57(1), 167-168, 1989.

KAUFMAN, R.F. & BLISS, J.D. **Effects of phosphate mineralization and the phosphate industry on Ra-226 in groundwater if central Florida**. Las Vegas, NV, United States Environmental Protection Agency, 1977 (EPA/520-6-77-010).

KIM, Y.J., KIM, C .K., LEE J.I. Simultaneous determination of ^{226}Ra and ^{210}Pb in groundwater and soil samples by using the liquid scintillation counter – suspension gel method. **Applied Radiation and Isotopes**, 54, (275 – 281), 2001.

LAWRENCE, E. P., WANTY, R. B., NYBERG, P. Contribution of ^{222}Rn in domestic water supplies to ^{222}Rn in indoor air in Colorado homes. **Health Physics**, 62 (2), 171-177, 1992.

LONGTIN, J. P. Occurrence of radon, radium, and uranium in groundwater. **J. Am. Water Works Assoc.**, v. 80, 84-93, 1988.

LONGTIN, J. P. **Occurrence of radionuclides in drinking water a national study**. IN: COTHERN, C. R. & REBERS, P. A., eds. Radon, radium and uranium in drinking water. Chelsea, Michigan, Lewis Publishers, 17-26, 1990.

LUCAS, H. F., Markun, F., Boulenger, R., 1990, **Methods for measuring radium: emanometry**. In: The environmental behaviour of radium, volume 1, 3-6. (IAEA technical report series, 310).

LUCAS, F. O., 2004, **Atividades do ^{226}Ra em águas subterrâneas extraídas de dois poços localizados no Plúton Meridional, Granitóides de Morungaba, SP**. Dissertação de Mestrado, Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas da Universidade de São Paulo.

LUCAS, F. O., RIBEIRO, F.B. Radium content in ground water from a granitic batholith of the metamorphic basement, eastern São Paulo State, Brazil. **Applied Radiation and Isotopes**, 64, p. 735-749, 2006.

LUCAS, F. O., RIBEIRO, F. B. Radon content in groundwaters drawn from the metamorphic basement, eastern São Paulo State, Brazil. **Radiation Measurements**, 42, 1703-1714, 2007.

LUCAS, F.O., RIBEIRO, F.B., OLIVEIRA, I.J.C., Development and calibration of a portable radon sampling system for groundwater. **J. Environ. Radioact.** (2009).

MICHEL, J., 1990. **Relationship of radium and radon with geological formations**. In: Cothorn, C.R. and Rebers, P.A., Editors, 1990. Radon, Radium and Uranium in Drinking Water, Lewis Publishers, Inc, MI, USA.

OLIVEIRA, I. J. C.; 2008, **Medida da atividade do ^{222}Rn em águas subterrâneas extraídas de dois poços perfurados em rochas metamórficas do Complexo Amparo, município de Amparo, SP.** Dissertação de Mestrado, Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas da Universidade de São Paulo.

OLIVEIRA, J.; 1993, **Determinação de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas minerais da região de Águas da Prata.** Dissertação de mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, CNEN-SP.

OLIVEIRA, J.; MOREIRA, S. R. D.; MAZILLI. Natural radioactivity in mineral spring waters of a highly radioactive region of Brazil and consequent population doses. **Radiation Protection Dosimetry.**, v.55(1), p. 57-59, 1994.

OLIVEIRA, J. DE.; MAZILLI, B. ; SAMPA, M. H. DE O.; SILVA, B. Seasonal variations of ^{226}Ra and ^{222}Rn in mineral spring waters of Águas da Prata , Brazil. **Appl. Radiat. Isot.**, v.49, p. 423-427, 1998.

OLIVEIRA, J. DE.; MAZILLI, B. P.; SAMPA, M. H. DE O.; BAMBALAS, E. Natural radionuclides in drinking water supplies of São Paulo State, Brazil and consequent population doses. **Journal of Environmental Radioactivity.**, v.53, p. 99-109, 2001.

OSMOND. J.K., COWART J. B. **Ground water.** 2.ed. New York, N.Y: Oxford University Press, 1992. cap 9, uranium-series disequilibrium: applications to earth, marine, and environmental sciences.p. 290-333.

OSMOND. J.K., IVANOVICH. M. **Uranium-series mobilization and surface hidrology.** 2.ed. New York, N.Y: Oxford University Press, 1992. cap 8, uranium-series disequilibrium: applications to earth, marine, and environmental sciences.p. 259-289.

REYES, E., MARQUES, L. S. Uranium series disequilibria in ground waters from a fractured bedrock aquifer (Morungaba granitoids-Southern Brazil): implications to the hydrochemical behavior of dissolved U and Ra. **Applied Radiation and Isotopes**, 2008.

SALIH, I., BÄCKSTRÖM, M., KARLSSON, S., LUND, E., PETTERSSON, B. L. H Impact of fluoride and other aquatic parameters on radon concentration in natural waters. **Applied Radiation and Isotopes**, 60 (1), 99-104, 2004.

SANTIKARY, P., YASHONATH, S., RAO, C.N.R. Molecular dynamics simulation of clathrates: noble gases in the cages of b-hydroquinone. **Chem. Phys. Lett.** 192, 390–394, 1992.

SEWKOV, T.M. Recoil-emation theory applied to radon release from mineral grains. **Geochimica et Cosmochimica Acta**,54, 425-440, 1990.

STEIN, L. The chemistry of radon. **Radiochim. Acta**,32, 163–171, 1983.

SUN, H., SENKOW, T.M. Mobilisation of thorium, radium and radon radionuclides in groundwater by successive alpha recoils. **J. Hydrol.** 205, (126–136), 1998.

TANNER, A. B., 1964, **Radon migration in the ground: a review**. In: The Natural Radiation Environment Symposium. J. A. S. Adams, W. M. Lowder, editors. University of Chicago Press.

TANNER, A. B., 1980, **Radon migration in the ground: a supplementary review**. In: The Natural Radiation Environment III, T. F. Gesell and W. M. Lowder, editors, volume 1, pp. 5-56. Technical Information Center, U. S. Department of Energy.

UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY (USEPA). **Final draft for the drinking water criteria document on radium**, USA, JUN. 1991, (TR-1241-85).

VLACH, S. R. F., 1985, **Geologia, petrologia e geocronologia das regiões meridional e oriental do complexo de Morungaba, SP**. Dissertação de mestrado, IGc-USP, São Paulo.

VLACH, S. R. F., 1993, **Geologia e Petrologia dos granitóides de Morungaba, SP**. Tese (doutorado), IGc-USP, São Paulo.

VLACH, S. R. F., 1998, **Teores de U, Th e K dos granitóides de Morungaba, SP, e implicações para a produção de calor radiogênico e para radiação natural**. 40º Congresso Brasileiro de Geologia, Belo Horizonte, 395.

WOOD, W. W., KRAEMER, T. F., SHAPIRO, A., Radon (^{222}Rn) in ground water of fractured rocks: a diffusion/ion exchange model. **Ground Water**, 42 (4), 552-567, 2004.

ZHUO, W., IIDA, T., YANG, X. Occurrence of ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{228}Ra and U in groundwater in Fujian Province, China. **Journal of Environmental Radioactivity**, 53, 111-120, 2001.

ANEXOS