UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

CENTRO DE ENERGIA NUCLEAR NA AGRICULTURA

JOSÉ FLÁVIO MACACINI

Desenvolvimento de método para quantificação de taxa de exalação de ^{222}Rn em bacia de rejeitos radioativos e estudo de solo como material mitigador

Piracicaba
2008

JOSÉ FLÁVIO MACACINI

Desenvolvimento de método para quantificação de taxa de exalação de ^{222}Rn em bacia de rejeitos radioativos e estudo de solo como material mitigador

Tese apresentada ao Centro de Energia Nuclear na Agricultura da Universidade de São Paulo para a obtenção de título de Doutor em Ciências.

Área de concentração: Energia Nuclear na Agricultura e Ambiente
Orientadora: Profa. Dra. Elisabete A. De Nadai Fernandes

Piracicaba
2008

AUTORIZO A REPRODUÇÃO E DIVULGAÇÃO TOTAL OU PARCIAL DESTE TRABALHO, POR QUALQUER MEIO CONVENCIONAL OU ELETRÔNICO, PARA FINS DE ESTUDO E PESQUISA, DESDE QUE CITADA A FONTE.

Dados Internacionais de Catalogação na Publicação (CIP)
Seção Técnica de Biblioteca - CENA/USP

Macacini, José Flávio
Desenvolvimento de método para quantificação de taxa de exalação de ^{222}Rn em bacia de rejeitos radioativos e estudo de solo como material mitigador / José Flávio Macacini;
orientadora Elisabete A. De Nadai Fernandes. - - Piracicaba, 2008.
152 f. : fig.

Tese (Doutorado – Programa de Pós-Graduação em Ciências. Área de Concentração: Energia Nuclear na Agricultura e no Ambiente) – Centro de Energia Nuclear na Agricultura da Universidade de São Paulo.

1. Adsorção 2. Carvão ativado 3. Espectrometria 4. Radiação gama 5. Rejeitos de mineração I. Título

CDU 539.16:546.296

Amo uma mulher

Amo como se a vida não tivesse fim

Amo os sonhos,

os filhos,

e o amor dela.

Amo, muito,

a menina dos olhos

da minha mulher

José Flávio

DEDICATÓRIA

Eu dedico este trabalho à minha esposa
Luciene e aos nossos filhos
Gabriela ,
João Victor e
Ana Carolina .

AGRADECIMENTOS

À Universidade de São Paulo – USP

Ao Centro de Energia Nuclear na Agricultura – CENA

À Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN

Ao Laboratório de Poços de Caldas – LAPOC

À Dra. Elisabete A. De Nadai Fernandes pela orientação, amizade e principalmente pela confiança no trabalho que juntos realizamos;

Ao Dr. Antônio Luiz Quinelato pelo apoio e contribuição na viabilização do trabalho;

Ao Dr. Wilson Cervi da Costa pela oportunidade;

À Dra. Heliana de Azevedo Gomes pelo incentivo;

Aos mestres Prof. Dr. Virgílio Franco Nascimento Filho e Prof. Dr. Paulo Leonel Libardi pelas opiniões e exemplos de Homens de ensino e ciência;

Ao gerente de mina Edenil Melo de Britto pelo apoio e ajuda durante a execução deste trabalho;

Aos bolsistas de iniciação científica Rodrigo de Paiva, Tiago Massaro e Tiago Pena Volpe pela dedicação e ajuda na execução dos trabalhos de campo e laboratoriais;

Aos colegas de trabalho do Laboratório de Poços de Caldas pelo apoio administrativo: Carlos Miranda, Letícia, Giusepe, e Joaquim e apoio técnico: Henrique, Marcos Roberto, Wilsinho, Bronca, Eder e Maran; de infra-estrutura: Batiá, Sr. Josino, Sr. José Eletricista, Pitica, Eusinio, Nil, Julinho e Vitorino;

À minha irmã, Flaviani pelo incentivo;

Aos meus avós Guilherme, João Roque, Ana de Lima e Maria Aparecida pelos exemplos de vida e incentivo nos estudos;

Aos meus pais Maria de Oliveira Macacini e José do Carmo Macacini pelo apoio e incentivo;

Aos meus pais adotivos Alcindo Candido da Silva e Ana Altina da Silva pela amizade e carinho;

Aos amigos e colegas de trabalho Mário Osvaldo Fraenkel, Rosenvelt Rosa e João Batista Siqueira pelo incentivo, amizade e exemplos de ética e companheirismo;

Aos amigos do Laboratório de Radioisótopos Márcio, Fábio, Cláudio, Camila, Adriana e Ângela pela amizade e apoio no desenvolvimento dos trabalhos;

Aos amigos Rute e Leandro, Fernando e Jacira, Alexandra e Paulo, Regina e Toninho, Didi e Carzé, Karla e Nivaldo, Daniela e Alexandre, Nil e Antonio, Adriene e Paulino, Marilene e Mauro, e Tânia pelo incentivo e bons momentos;

Aos amigos Ronald, Daniel, Beraldo, Betinho, Serjão, Ailton, Ibiraci, Saulo, Wladimir e João D'ângelo pelos momentos de descontração;

Aos irmãos da oficina, companheiros na investigação da verdade e prática de virtudes;

À minha esposa e filhos pelo apoio, incentivo e compreensão e

A DEUS pela vida e existência da radioatividade.

RESUMO

As Indústrias Nucleares Brasileiras (INB) processaram 2,32 10^6 t de minério de urânio em sua Unidade de Tratamento de Minério (UTM - Caldas) localizada no Planalto de Poços de Caldas. A instalação depositou, durante 16 anos de operação com minério de urânio, 2,39 10^9 kg de rejeito sólido, com concentração de atividade média de ^{226}Ra no rejeito igual a 7311 ± 184 Bq kg^{-1}, na bacia de rejeitos radioativos.

A maior parte dos átomos de ^{222}Rn gerados no rejeito radioativo da bacia fica presa na matriz mineral, porém, uma fração se liberta dela e emana. O ^{222}Rn ao atingir o espaço poroso do rejeito migra para a fronteira rejeito-atmosfera exalando. As propriedades características de transporte do ^{222}Rn e dano biológico de seus descendentes transformam esta pequena cadeia de decaimentos radioativos em um flagelo da natureza.

Devido a isto, a bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas foi o centro de estudos deste trabalho. Assim, foi desenvolvida metodologia para quantificação da taxa de exalação de ^{222}Rn na bacia e o solo de suas imediações foi avaliado experimentalmente como material de cobertura para atenuação da sua taxa de exalação.

O coletor de ^{222}Rn desenvolvido, denominado 607, foi construído em alumínio, fundamentando-se nas propriedades de adsorção do carvão ativado. Diferentemente do coletor de grande área normatizado pela United States Environmental Protection Agency (USEPA), mostrou-se exato e preciso com relação à coadsorção de até 7,00 g de vapor d'água em tempo de amostragem menor que 5,0 dias. Estas propriedades foram verificadas devido à criação de um padrão de taxa de exalação de ^{222}Rn preparado com caldasito, minério de urânio com alta

concentração de ^{226}Ra (26611 ± 581 Bq kg^{-1}) moído na faixa granulométrica de 1,168 mm a 0,589 mm. Somam-se ainda as vantagens de, operacionalmente, o coletor 607 oferecer maior agilidade devido à sua área de amostragem ser 7 vezes menor que o coletor de grande área e, após montagem, aceitar armazenamento em fornos com temperaturas de 72 ^{o}C.

As amostragens de taxas de exalação de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos foram realizadas com o coletor 607 seguindo o delineamento experimental da USEPA. Os resultados médios foram: para a asa oeste, iguais a 1,30 ± 1,24 Bq m^{-2} s^{-1} no inverno de 2006 e 2,11 ± 2,12 Bq m^{-2} s^{-1} no verão de 2007; para a asa norte, iguais a 1,15 ± 1,67 Bq m^{-2} s^{-1} no inverno e 1,03 ± 1,26 Bq m^{-2} s^{-1} no verão, ambos obtidos em 2007. Estes valores permitiram avaliar uma cobertura de solo colocada sobre a bacia de rejeitos que reduzisse a taxa de exalação de ^{222}Rn para valores abaixo do limite de 0,74 Bq m^{-2} s^{-1} da USEPA. Este estudo foi realizado em colunas de solo-rejeito utilizando solo das imediações da bacia de rejeitos e seguindo os procedimentos de compactação da United States Regulatory Nuclear Commission (USRNC). Os resultados indicaram camadas redutoras de 0,14 m e 0,20 m para as asas norte e oeste da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas, respectivamente.

ABSTRACT

The Brazilian uranium mining company (INB) processed 2.32 10^6 tons of uranium ore in its ore treatment unit (UTM - Caldas), located in the Poços de Caldas plateau. During 16 years of operation, this unit discarded 2.39 10^6 tons of solid waste in a tailing dam, with an average activity concentration of ^{226}Ra of 7311 ± 184 Bq kg^{-1}.

Most of the atoms of ^{222}Rn generated from the radioactive waste of the tailing dam remain bounded to the mineral structure. However, a fraction of these atoms can be released from the mineral structure and then emanate. Reaching the porous space of the waste piles, the ^{222}Rn moves towards the interface waste-atmosphere, exhaling into the atmosphere. The featuring properties of the ^{222}Rn transport and the biological damage caused by its progeny transform this small chain of radionuclides into a scourge of nature. Because of that, the dry area of the tailing dam was the scope of this work. A methodology was developed for quantifying the exhalation rate of ^{222}Rn. Moreover, the soil from its surroundings was experimentally evaluated as a cover material to reduce the exhalation of ^{222}Rn.

A collector of ^{222}Rn was developed, being denominated 607. This collector was proved to be exact and precise after laboratory tests, when a standard for ^{222}Rn exhalation was prepared with caldasito, an uranium ore with high concentration of ^{226}Ra (26611 ± 581 Bq kg^{-1}), crushed to the granulometric interval from 1.168 mm to 0.589 mm. The results of ^{222}Rn exhalation rate using the collector 607 were not influenced by the adsorption of water steam, considering sampling periods lower than 5 days and mass of water steam lower than 7 g.

Sampling for measuring ^{222}Rn exhalation rates in the dry area of the tailing dam was carried out using the collector 607, following the experimental design established by the United States Environmental Protection Agency (USEPA). The average exhalation rate in the west part of the tailing dam was 1.30 ± 1.24 Bq m^{-2} s^{-1} in the winter of 2006 and 2.11 ± 2.12 Bq m^{-2} s^{-1} in the summer of 2007; while in the north part, the exhalation rate was 1.15 ± 1.67 Bq m^{-2} s^{-1} in the winter and 1.03 ± 1.26 Bq m^{-2} s^{-1} in the summer, both results determined in 2007.

An experiment was set to estimate the depth of the soil layer necessary to reduce ^{222}Rn exhalation rate to values below the reference limit of 0.74 Bq m^{-2} s^{-1} (USEPA). This study was performed in piles of solid waste covered with soil taken from the area surrounding the tailing dam. The soil was compacted following the United States Nuclear Regulatory Commission (USNRC) procedures. The results indicated layers of 0.14 m and 0.20 m respectively for the north and west part of the tailing dam.

SUMÁRIO

		Página
1.	**INTRODUÇÃO**	14
2.	**REVISÃO DA LITERATURA**	18
2.1	Breve histórico da produção de urânio na Unidade de Tratamento de Minérios das Indústrias Nucleares do Brasil de Caldas	18
2.2	Geologia do Planalto de Poços de Caldas e a jazida de urânio do Campo do Cercado	20
2.3	Descomissionamento	23
2.4	Radônio e carvão ativado	25
2.5	Emanação e exalação de ^{222}Rn	29
2.6	Dosimetria de ^{222}Rn e de seus filhos de meia-vida curta	32
2.7	A mitigação da taxa de exalação	35
3	**MATERIAIS E MÉTODOS**	40
3.1	O coletor de ^{222}Rn	40
3.1.1	O carvão ativado utilizado	40
3.1.2	A preparação do carvão ativado para amostragem	41
3.1.3	A geometria do coletor de ^{222}Rn	42
3.1.4	O procedimento de montagem do coletor de ^{222}Rn	46
3.2	A taxa de exalação de ^{222}Rn	47
3.2.1	A amostragem de ^{222}Rn	48
3.2.2	A preparação para contagem	50
3.2.3	A quantificação da atividade de ^{222}Rn na amostra – a contagem	52
3.2.4	A determinação da taxa de exalação de ^{222}Rn	56

3.3 Avaliação do coletor de ^{222}Rn 58

3.3.1 A distribuição de ^{222}Rn no coletor 58

3.3.2 A coadsorção de vapor d'água 59

3.3.3 A comparação com o coletor de grande área 60

3.3.4 A amostragem em ambiente controlado 61

3.4 A bacia de rejeitos radioativos e os procedimentos de amostragem 62

3.4.1 O limite de exalação e os procedimentos de amostragem 65

3.4.2 Delineamento experimental 66

3.4.3 A amostragem de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos 66

3.5 O solo utilizado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn 67

3.5.1 O modelo de transporte de ^{222}Rn 69

3.5.2 A amostragem de solo 75

3.5.3 A amostragem de rejeito 77

3.5.4 Preparação do solo e rejeito para montagem das colunas 78

3.5.5 Procedimentos de montagem das colunas 80

3.5.6 O experimento para avaliação da eficiência de atenuação do solo 82

3.5.7 Parâmetros de campo do modelo de transporte de ^{222}Rn 82

3.6 O padrão de exalação 90

4 **RESULTADOS E DISCUSSÃO** 94

4.1 A coadsorção de ^{222}Rn e vapor d'água 94

4.2 A distribuição de ^{222}Rn no coletor 607 97

4.3 A comparação entre os coletores em amostragens realizadas em ambiente controlado 100

4.4 O padrão de exalação de ^{222}Rn 102

4.5 O padrão de trabalho de exalação de ^{222}Rn 104

4.6 A taxa de exalação de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos 105

4.7 Os parâmetros do solo e do rejeito do modelo de transporte de ^{222}Rn 108

4.8 O solo estudado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn 115

4.9 Considerações finais sobre as camadas de solo de cobertura da bacia de rejeitos 125

5 **CONCLUSÕES** 127

6. **REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS** 129

7 **APÊNDICE** 137

8 **ANEXO** 152

1. INTRODUÇÃO

A utilização da fissão nuclear na geração de energia trouxe benefícios para a humanidade. Entretanto, independentemente da técnica de obtenção de energia, existem fatores de risco ambientais e ocupacionais que, neste início de milênio, estão favorecendo projetos de geração termonuclear utilizando fissão.

O ciclo do combustível nuclear tem início na separação de isótopos de urânio dos demais componentes da matriz de origem, através de lixiviação ácida e extração por solventes orgânicos. Todo o subproduto resultante desta etapa, incluindo-se isótopos de tório e rádio, é considerado rejeito radioativo e disposto em local denominado bacia de rejeitos radioativos ou, simplesmente, bacia de rejeitos.

A disposição de rejeitos industriais radioativos contendo ^{226}Ra apresenta problema adicional em virtude de seu decaimento para ^{222}Rn, um gás nobre sem isótopo estável e de meia-vida relativamente longa – 3,823 dias, podendo migrar por longas distâncias até ambientes de convívio humano.

O decaimento do ^{222}Rn ou filhos nas vias aéreas de humanos representa um problema sério de saúde pública para a humanidade. Nos Estados Unidos, foi considerado responsável por cerca de 12% das mortes atribuídas a câncer de pulmão (GEORGE, 2001). A dose efetiva per capita mundial, para fontes naturais e não naturais, foi estimada em 2,8 mSv ano^{-1} e, deste total, 41% foram atribuídos à dose por inalação de ^{222}Rn e filhos, com valores típicos situados entre 0,2 mSv ano^{-1} a 10 mSv ano^{-1} (UNSCEAR, 2000).

Uma bacia de rejeitos radioativos é uma fonte considerável de geração de ^{222}Rn e sua capacidade de contaminar a atmosfera pode representar acréscimo

significativo de dose para o grupo crítico – membros da população cujas exposições são razoavelmente homogêneas e típicas dos indivíduos que recebem as maiores doses equivalentes (CNEN, 2005a).

Impedir que os decaimentos do ^{222}Rn e filhos ocorram nos sistemas respiratórios de seres vivos significa reduzir o número de eventos desta natureza ou, simplesmente, diminuir a concentração de ^{222}Rn na atmosfera. A saída de ^{222}Rn do local de origem pode ser dificultada interpondo, entre a fonte e a atmosfera, barreiras que dificultem sua saída da bacia de rejeitos radioativos (IAEA, 1990).

Para atenuação de ^{222}Rn na atmosfera, uma barreira em uma bacia de rejeitos deve ser realizada com materiais comprovadamente eficientes e resistentes a intempéries. Portanto, decorrente das dimensões envolvidas e da meia-vida do ^{226}Ra de 1600 anos, o projeto de cobertura deve ser realizado com solos que compatibilizem custo e, principalmente, longevidade.

A utilização de sistema de cobertura com multicamadas, ou seja, a adição de solo fértil associado com cobertura vegetal apresenta vantagens, pela proteção da primeira camada com relação à resistência a intempéries e, especialmente, à durabilidade da cobertura.

No Brasil, a jazida de urânio do Campo do Cercado, localizada no Planalto de Poços de Caldas, Minas Gerais, foi descoberta em 1970 e, em 1977, a Nuclebras, estatal proprietária da jazida na época, iniciou a decapagem da mina. A unidade industrial, primeiro empreendimento de lavra e tratamento de minério de urânio no país, entrou em operação em fevereiro de 1982, tendo sua atividade encerrada em outubro de 1995 (FERNANDES, 1997). Os resíduos industriais foram depositados em uma bacia de rejeitos radioativos com capacidade inicial de 2,17 10^6 m^3 e com espelho d'água de 23 hectares. Contudo, em 1995, o extravasor

foi alteado em 2,0 m, elevando o valor anterior para 2,40 10^6 m^3. Embora a massa depositada de rejeitos sólidos da usina tenha sido 2,39 10^6 t, superando o valor inicial projetado (CIPRIANI, 2002), a bacia ainda apresenta aproximadamente 30% do espelho d'água inicial. Isto ocorreu devido à técnica empregada no descarte de material em duas cabeceiras – hoje denominadas Asas da Andorinha, criando características de amontoa na disposição dos resíduos nas duas asas.

Segundo Fernandes (1997), a concentração de atividade de ^{226}Ra em uma das asas, nos primeiros 0,80 m superficiais do rejeito industrial depositado na bacia, ficou entre 1000 Bq kg^{-1} e 4000 Bq kg^{-1}, com média de 2500 Bq kg^{-1}. O mesmo autor concluiu que o maior componente da dose para um indivíduo vivendo sobre a bacia de rejeitos radioativos seria devido ao ^{222}Rn e igual a 40 mSv ano^{-1}.

Neste aspecto, a bacia de rejeitos radioativos da Unidade de Tratamento de Minério (UTM) – Caldas pertencente às Indústrias Nucleares do Brasil, pode representar causa de problemas de saúde para o grupo crítico - principal justificativa da necessidade de quantificação da exalação de radônio. Portanto, faz-se necessário realizar estudos com materiais disponíveis nas imediações da bacia como elemento mitigador. Além disto, é importante iniciar o histórico da exalação de ^{222}Rn no local, propiciando dados relevantes para o descomissionamento como também para a avaliação do impacto ambiental devido à implantação dessa bacia de rejeitos radioativos.

O caráter de pioneirismo deste trabalho deve ser salientado, pelo fato de a bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas ser o primeiro local no Brasil a ter a exalação de ^{222}Rn quantificada por metodologia aprimorada e validada em um laboratório nacional. Mais ainda, os procedimentos metodológicos irão auxiliar na regulamentação da disposição de resíduos industriais com isótopos radioativos

associados pela indústria do ciclo do combustível nuclear e mineradoras convencionais que utilizem matérias primas que contenham elementos radioativos naturais.

Em decorrência dos valores de massa de rejeitos e radionuclídeos associados existentes na bacia de rejeitos industriais da UTM – Caldas sugerirem alteração significativa no seu entorno ou ambiente e possível incremento de dose na população circunvizinha, pretende-se neste trabalho:

i. Desenvolver um coletor de Rn, utilizando a técnica de sorção em carvão ativado, que proporcione praticidade na determinação e confiabilidade nos resultados;
ii. Estudar o comportamento do coletor frente à coadsorção de vapor d'água;
iii. Quantificar a taxa de exalação de ^{222}Rn na bacia de rejeitos utilizando o coletor com carvão ativo desenvolvido;
iv. Realizar medidas comparativas da taxa de exalação de ^{222}Rn entre o coletor desenvolvido neste trabalho e um outro de grande área aceito pela Agência Americana de Proteção Ambiental (United States Environmental Protection Agency – USEPA) e
v. Avaliar um sistema de cobertura para a bacia de rejeitos radioativos a partir dos material (solo) disponível nas suas imediações para atenuação de sua taxa de exalação de ^{222}Rn.

2. REVISÃO DA LITERATURA

A produção de urânio no mundo foi iniciada em meados do século passado e muitas minas esgotadas foram descomissionadas. Decorrente da experiência mundial na readequação ambiental destes locais quanto à exalação de radônio, a seção de revisão da literatura foi separada em subseções, almejando uma diferenciação adequada à abordagem do fim das atividades industriais da primeira unidade de mineração de urânio do Brasil.

2.1 Breve histórico da produção de urânio na Unidade de Tratamento de Minérios das Indústrias Nucleares do Brasil de Caldas

Em 1948, técnicos do Departamento Nacional de Produção Mineral - DNPM descobriram a associação de radioatividade natural com minério de zircônio do Planalto de Poços de Caldas. Quatro anos depois, técnicos da “United States Geological Survey” (USA) constataram a presença de radioatividade em minerais zirconíferos do planalto de Poços de Caldas, denominados caldasito. Em 1964, foram iniciados os trabalhos de prospecção na região do Campo do Cercado que, em 1970, levariam à descoberta da jazida de urânio localizada em um morro que deu origem ao nome da região (INB, 1999).

Alguns trabalhadores aposentados das Indústrias Nucleares do Brasil - INB relataram que a palavra Cercado, no nome Campo do Cercado, advinha da

existência de uma cerca de arame farpado para impedir a permanência de gado no cimo do morro, pois, nele, havia alta incidência de queda de raios.

Em 1976, a Nuclebras (Empresas Nucleares Brasileiras S. A.) contratou a empresa francesa Uranium Pechiney Ugine Kuhlman (UPUK) para execução do projeto de mineração e da usina de beneficiamento de minério de urânio. A operação comercial foi iniciada em 1982 e, em outubro de 1995, foram interrompidas as atividades de lavra. A produção total de urânio foi de 1,030 10^6 kg de U_3O_8, valor inicialmente projetado para 4,25 10^6 kg.

A lavra foi realizada a céu aberto e a abertura da cava aproximadamente circular tendo diâmetro de 1200 m na sua maior extensão. Inicialmente, o minério estava distribuído em três corpos A, B e E com teores médios de urânio de 700 ppm, 800 ppm e 1200 ppm, respectivamente. Após britagem e moagem, o minério era transformado em polpa, condicionada a 55% em sólidos e, então, bombeada para a área industrial para ataque químico. O ataque químico foi realizado com ácido sulfúrico em tanques de lixiviação aquecidos à temperatura de 60°C a 70°C, resultando U^{-4} solubilizado sob a forma de sulfato de uranila (INB, 1999).

A separação da solução contendo urânio do rejeito sólido era realizada em filtros esteira. A solução era submetida a processo de extração líquido-líquido, em contra corrente com solução orgânica. O resíduo sólido era retomado com água, formando uma polpa que era bombeada para o tratamento de efluentes sólidos neutralizados com cal e calcáreo e lançados na bacia de rejeitos (INB, 1999).

Segundo Fernandes (1997), o primeiro descarte de rejeitos industriais radioativos na bacia ocorreu em 1982 sendo a composição média dos rejeitos sólidos depositados na bacia formada de óxidos de estáveis (SiO_2 – 54,0%, Al_2O_3 - 23,4%, Fe_2O_3 – 3,9%, CaO – 0,25%, ZrO_2 – 0,15%, P_2O_5 – 0,09%), sulfato, sulfeto,

potássio e radioativos (U – 0,018%, Th – 0,004%, ^{226}Ra – 2,5 Bq g^{-1}, ^{210}Pb – 3,45 Bq g^{-1} e ^{228}Ra – 1,45 Bq g^{-1}).

Os produtos da lixiviação ácida na bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas eram neutralizados por solução de cal, introduzida na neutralização durante o processo de tratamento dos rejeitos industriais. A partir deste ponto a solução, inicialmente básica com pH 10, torna-se ácida até uma profundidade de 1,5 m (FERNANDES, 1997). Atualmente, a redução do pH é resolvida com a adição de solução de cal toda vez que seja verificada tendência de diminuição do pH do efluente líquido (CIPRIANI, 2002). Este processo atenua a acidificação da bacia de rejeitos radioativos e, consequentemente, a drenagem ácida.

2.2 Geologia do Planalto de Poços de Caldas e a jazida de urânio do Campo do Cercado

A mina do Campo do Cercado, denominada Osamu Utsumi, localiza-se dentro de uma zona afetada pelos processos de reativação vulcânica ocorridos durante a colocação do maciço (INB, 1999). O maior complexo alcalino do Brasil – o grande estrato-vulcão alcalino de Poços de Caldas, é uma caldeira vulcânica com cerca de 30 km de diâmetro constituído por brechas, plutões e derrames minerais que atingiram a superfície por, pelo menos, cinco grandes condutos identificados (BIONDI, 2003). São estruturas secundárias circulares com diâmetro variando entre 1 km e 5 km, remanescentes de antigos vulcões que integram a estrutura maior

delimitada por um grande dique anelar de tinguaíto com idade estimada entre 87 e 60 milhões de anos (FRAENKEL, 1985).

A região é ocupada por diversos tipos de nefelina - sienitos, com efetiva atuação dos processos de alteração hidrotermal subvulcânico em ambiente vulcânico emerso e/ou plutônico superficial (0 a 2,0 km) disseminado em sienitos alcalinos. Os depósitos de U-Zr-Mo são constituídos por minérios primários compostos por uraninita, zircão e molibdenita disseminados em brechas de diques formados por fluidificação (CIPRIANI, 2002; BIONDI, 2003).

A percolação das rochas, alta em corpos minerais brechados, por soluções hidrotermais carregadas de urânio e outros elementos oferecem boas condições de permeabilidade, resultando em uma matriz impregnada de urânio, molibdênio e outros elementos químicos (INB, 1999; CIPRIANI, 2002).

As soluções oxidantes das regiões próximas à superfície propiciaram o aparecimento de ambiente favorável à ocorrência de reconcentração – solubilização e reprecipitação de urânio de natureza secundária, fenômeno observado em todo o depósito, porém, de forma mais expressiva nas rochas encaixadas não brechadas, dispostas ao redor dos corpos de brechas. Esse tipo de mineralização uranífera é expressa como uma concentração secundária de óxidos de urânio (UO_2, UO_3). A migração das soluções carregadas de urânio formadas pelo avanço *par descensum* da frente de oxiredução atuou em toda a formação do depósito e, abaixo da zona oxidada, o urânio se depositou em pontos com porosidade elevada (INB, 1999; CIPRIANI, 2002).

Os corpos mineralizados da mina Osamu Utsumi estão situadas em uma chaminé de brecha, com formato cônico (600 x 1200 m), quase toda preenchida por

brechas tinguaíticas. Toda a chaminé e sua vizinhança foi hidrotermalmente alteradas, cujo principal tipo foi a argilização pervasiva (BIONDI, 2003).

Para simplificar a compreensão do depósito, os diferentes tipos de mineralizações foram reunidos em dois tipos: mineralizações do tipo primário, ligadas aos fenômenos de percolação de soluções hidrotermais, e mineralizações do tipo secundário, ligadas ao avanço *par descensum* de uma frente de oxirredução (INB, 1999; CIPRIANI, 2002).

A mina está geologicamente localizada na borda de uma intrusão sienítica secundária, ocupando área de 200 ha. A mineralização de urânio foi dividida em três corpos distintos denominados, operacionalmente, corpos A, B (B+ e B-) e E. A formação dos depósitos está relacionada com a intrusão de um corpo sienítico (foiaito) em rochas hospedeiras tinguaíticas afetadas por atividade vulcânica (INB, 1999; CIPRIANI, 2002).

O corpo A, com teor médio de 600 ppm, de U, foi descrito como estruturalmente constituído por uma brecha vulcânica monogênica, com elementos formadores constituídos por fragmentos da rocha encaixante tinguaítica com formatos normalmente angulosos, A matriz é similar ao corpo B com brechas com ocorrência de caulins (INB, 1999; CIPRIANI, 2002).

O corpo B, com teor médio de 680 ppm de U, foi descrito como um corpo de minério constituído, basicamente, por uma volumosa massa de brechas, dispostas na forma de tubo. As brechas caracterizam-se por uma estrutura poligênica com elementos oriundos da fragmentação das rochas encaixantes e da intrusiva foiaítica. A matriz mostrava uma textura tinguaítica contrastante constantemente impregnada por produtos hidrotermais tais como pirita, fluorita, minerais de urânio, molibdênio e zircônio. Em pequenas quantidades, era possível encontrar galena, esfalerita e

barita e, apesar da natureza primária, foram observadas zonas com presença de urânio de origem secundária (INB, 1999), (CIPRIANI, 2002).

O corpo E, com teor médio de 1.000 ppm de U, constituía um pacote de rochas encaixantes não brechadas onde eram encontradas reconcentrações expressivas secundárias. (INB, 1999; CIPRIANI, 2002).

A atividade mineradora na mina foi realizada de forma a descartar em bota-foras todo o material lavrado com teor de urânio solúvel inferior a 170 ppm e, após britagem e moagem do minério, enviar para a área industrial uma composição de minério com granulometria inferior a 1,168 mm e teor médio de urânio solúvel igual a 680 ppm.

Após o esgotamento ou empobrecimento das concentrações de urânio no minério, as minas, os depósitos de estéreis ou bota-foras, a bacia de rejeitos e todo o setor de processamento industrial são desativados operacionalmente e, então, entram em processo de descomissionamento.

2.3 Descomissionamento

Descomissionar significa implementar medidas, no final da vida útil de uma instalação nuclear, com objetivos de realinhamento entre a situação pré-operacional e o ambiente atual, almejando a liberação do local para uso irrestrito (IAEA, 1994).

O retorno à situação original é inviável, porém, podem ser empregadas barreiras naturais e tecnologias que propiciem a liberação de contaminantes

radioativos abaixo dos limites estabelecidos ou abaixo de valores considerados não prejudiciais ao meio ambiente e à saúde humana.

Após britagem, moagem e beneficiamento do minério, o rejeito industrial resultante do processo, ressaltando-se o ^{230}Th e ^{226}Ra nele contidos, é depositado na bacia de rejeitos radioativos com porosidade superior e granulometria inferior à original, alterando os valores básicos dos parâmetros para exalação de ^{222}Rn, tais como os de recuo do átomo filho do ^{222}Rn e coeficientes de emanação (SASAKI, 2004). Neste contexto, o ^{222}Rn exalado na região fronteiriça da bacia com a atmosfera pode representar um problema significativo, segundo aspectos radiológicos, para a população circunvizinha.

A caracterização da produção de ^{222}Rn na UTM – Caldas foi pouco realizada antes, durante ou após a lavra. Em trabalho apresentado por Taddei et al. (2001), foi avaliada a taxa de exalação de ^{222}Rn no bota-fora 4, através da técnica de sorção em carvão ativo em coletor desenvolvido por Countess (1976) e adaptado por Macacini (2001). Resultados importantes sobre a produção de ^{222}Rn no Campo do Cercado – nome do morro que deu lugar à mina Osamu Utsumi, são apresentados por Pereira (1977), estimando o ambiente local da mina em termos de exalação de ^{222}Rn anteriormente à decapagem.

Não foi encontrado na literatura trabalho ou referência sobre a quantificação da emanação ou exalação de ^{222}Rn na bacia de rejeitos da UTM – Caldas, fato confirmado junto à gerência e técnicos do Serviço de Proteção Radiológica da UTM – Caldas.

2.4 Radônio e carvão ativado

O ^{222}Rn tem massa atômica igual a 222, número atômico igual a 86, ponto de fusão igual a 202 K e de ebulição igual a 211,3 K. O ^{222}Rn, o sexto radioisótopo filho da cadeia natural do ^{238}U, decai através de uma radiação alfa (5590,3 keV) para ^{218}Po, que, também por emissão alfa, decai para ^{214}Pb. Este decai para ^{214}Bi e depois para ^{214}Po, ambos por emissão beta; finalmente, o ^{214}Po decai para ^{210}Pb por emissão alfa, encerrando a pequena cadeia de decaimentos de meia-vida curta dos filhos de ^{222}Rn.

Algumas separações químicas são realizadas através da habilidade de átomos ou moléculas fluidas de aderir a superfícies de sólidos – este fenômeno é chamado adsorção. Nestes sólidos, é desejável que sua área superficial seja a maior possível e, quando a apresentam, são denominados adsorventes. Carvões ativados apresentam esta propriedade e os de origem vegetal podem exibir área superficial entre 600 m^2 e 1200 m^2 por grama de carvão, dependendo da metodologia de ativação utilizada (MUCCIACITO, 2008).

O carvão ativado é um composto carbônico produzido a partir de madeira, carvão mineral, casca de coco, osso, etc. O produto utilizado, o processo e o tempo de ativação definem a área superficial (AS). Ao submeter a matéria prima a temperaturas entre 800 ^oC a 1100 ^oC com injeção de gases ativantes tais como vapor d´água (H_2O), nitrogênio (N_2) ou dióxido de carbono (CO_2) no sistema, obtém-se um produto final similar ao carvão convencional, porém, de forma microcristalina, não grafítica e com um incremento significativo na porosidade. A ativação desta propriedade dá nome a este tipo especial de carvão, caracterizado pela grande área

superficial e pela estrutura interna de poro ou de “esponja” em todo o esqueleto do carvão ativado. Segundo Valencia (2007), esta estrutura assemelha-se a uma rede de micro túneis que bifurcam em canais menores à medida que se adentra no corpo do grânulo de carvão ativado.

A adsorção de átomos ou moléculas gasosas em carvão ativado pode ser representada por uma reação química A + B ↔ A B, onde A é o adsorvato (^{222}Rn ou vapor d’água), B é o adsorvente (carvão ativado) e A B é o composto adsorvido. Os adsorvatos ficam ligados à estrutura do carvão através de ligações de hidrogênio, interações dipolo-dipolo ou forças de London ou Van der Waals. A adsorção física ou fisiosorção ocorre pela ação de forças de natureza eletrostática de atração (Van der Waals) entre o adsorvato e átomos superficiais do carvão ativado (VALENCIA, 2007).

A adsorção de moléculas ou átomos apolares pelo carvão ativado é atribuída à ausência de polaridade da camada superficial do carvão ativado e o mecanismo de adsorção entre eles ainda é desconhecido (VALENCIA, 2007).

O carvão ativado granulado tem ampla utilização em estações de tratamento de água e é caracterizado por uma área superficial maior, número maior de locais de adsorção e tamanho reduzido de diâmetro de poros comparativamente com carvão ativado em pó.

De maneira geral, segundo a IAEA (1992), existem três métodos básicos de medida de exalação de ^{222}Rn em interfaces solo-ar:

1- Acumulação – esta técnica permite medir a concentração de ^{222}Rn em um recipiente metálico de alguns litros a até tambores de 200 L. O recipiente, geralmente cilíndrico e com uma das faces abertas, é inserido no solo cuja região

deseja-se medir o fluxo de ^{222}Rn. Um detector de radiação é disposto no interior do recipiente de forma a quantificar a atividade;

2- Sorção em carvão ativo – esta técnica faz uso das propriedades de sorção do ^{222}Rn em carvão ativado. Uma quantidade fixa de carvão é exposta ao ambiente que contém ^{222}Rn e este é sorvido pelo carvão. Suas principais vantagens são a simplicidade do dispositivo de amostragem, um recipiente metálico cheio com carvão ativado com uma das faces aberta, tempo curto entre início de amostragem e resultado da análise e possibilidade de realização de amostragens simultâneas;

3- Fluxo contínuo – esta técnica é uma variação da acumulação. A principal diferença é a medida da atividade de radônio em fluxo contínuo de ar. Esta variação permite que o volume interno do recipiente acumulador não sature com radônio e, consequentemente, ocorra sua perda para o meio exterior.

As técnicas de medição de ^{222}Rn e ^{220}Rn e seus filhos utilizam as radiações emitidas, independentemente ou combinadamente, durante o decaimento radioativo. Os dispositivos de medida dividem-se, basicamente, em três categorias, ou seja, instantâneos, integradores e contínuos e são classificados em ativos ou passivos – necessidade ou não de energia para realização da amostragem; os dispositivos que utilizam carvão ou detectores de traço se enquadram na última classe. Dispositivos ativos podem utilizar câmaras de ionização, cintiladores com sulfeto de zinco, diodos de silício, detecção por espectrometria alfa, gama (GEORGE, 1996) ou cintilação líquida (KOSLOWSKA, 1999).

Decorrente das propriedades físico-químicas do radônio, sua quantificação é inviável através de métodos químicos tradicionais de quantificação de elementos estáveis ou radioativos. Porém, o carvão ativado, um material natural modificado pelo homem, apresenta capacidade de aprisionamento de átomos ou moléculas

imersos em meios gasosos ou líquidos independentemente de sua reatividade química.

Os menores poros de carvões ativados granulados têm tamanho da ordem de 2,0 nm e são classificados pela União Internacional de Química Pura e Aplicada (IUPAC) como microporos. Devido ao raio atômico calculado do ^{222}Rn ser 0,12 nm, então, qualquer carvão ativado pode ser empregado para amostragem de ^{222}Rn.

A adsorção de radônio em carvão foi observada, pela primeira vez, por Rutherford em 1906, sugerindo que o fenômeno poderia ser usado para amostrar o gás. Eve (1907 apud HARLEY, 1992), utilizou o carvão para quantificar a emanação do rádio próximo à superfície da terra. A técnica foi abandonada, voltando à cena nos anos 50 através de Hursh (1954 apud HARLEY, 1992) e Stehney (1954 apud HARLEY, 1992), para quantificar a exalação de radônio em pinturas de mostradores de relógio. As determinações eram realizadas em câmara de contagem alfa e o radônio era deadsorvido do carvão por aquecimento.

A técnica seria novamente empregada em meados da década de 70 por Countess (1976), que sugeriu a utilização de filtros de máscaras (U.S. Army M11) como um método simples para a medida de exalação de radônio em superfícies. A inovação ficou por conta da metodologia de quantificação – detecção gama do ^{214}Bi. Na década seguinte, Hartley & Freeman (1986) apresentaram um dispositivo específico para quantificação da exalação de radônio em pilhas de fosfogesso. Posteriormente, a técnica foi estendida para minas subterrâneas e depósitos de rejeitos industriais para mineradoras de urânio.

EVE, A. S. On the amount of radium emanation in the atmosphere near the earth's surface. Philos. Mag. 14, 724 (1907).

HURSH, J. B. Measurement of breath radon by charcoal absorption. Nucleonics 12, p62 (1954).

STEHNEY, A. F.; Norris, W. P.; Lucas, H. F. John, W. H A method for measuring the rate of elimination of radon im breath. Am. J. Roentgenol. Radium Therapy Nucl. Méd. 73, 774 (1955).

Uma variação singela, porém significativa, foi apresentada por George (1984), que sugeriu a utilização do dispositivo apresentado por Countess (1976) para quantificação de ^{222}Rn em ambientes fechados (indoor). Deste ponto em diante, uma quantidade expressiva de trabalhos foram apresentados à comunidade científica que passou a aceitar a técnica como uma opção prática, rápida e barata, embora não tão simples quanto à dependência de variáveis ambientais.

2.5 Emanação e exalação de ^{222}Rn

Segundo Sun, Guo e Zhuo (2004), a emanação é o processo que controla o movimento de átomos de radônio do interior de partículas sólidas para o espaço poroso que a contém. Desta forma, a fração de emanação de ^{222}Rn ou coeficiente de emanação de ^{222}Rn é igual à fração de átomos de ^{222}Rn que, após decaimento do ^{226}Ra, transfere-se da matriz original ou partículas sólidas para o espaço poroso de solos ou rochas. A emanação quantifica a taxa de liberação de ^{222}Rn da matriz mineral para o espaço poroso e a transferência do ^{222}Rn do espaço poroso para a atmosfera é denominada exalação. A intensidade da transferência de ^{222}Rn do meio poroso para a atmosfera é medida pela taxa de exalação de ^{222}Rn.

O fator de emanação é dependente de características inerentes a partículas sólidas, tais como tamanho da partícula, temperatura e espécie mineral, de maneira geral, características físicas que atuem como facilitadores da emanação do ^{222}Rn (ISKANDAR, 2004). Valores típicos estão em torno de 20%, entretanto já foram determinados valores que variaram de 1% a 91% (JENSEN, 1978).

Megumi & Mamuro (1974) avaliaram a granulometria do solo correlacionada com a exalação e a emanação. Os resultados apontaram relação inversa entre granulometria e tanto emanação quanto exalação, observando aumento de 7 vezes na taxa de exalação para uma variação granulométrica de 10 mesh para 200 mesh. Amin et al. (1995) observaram variação menos significativa em monazita, porém seguindo a tendência de aumento de emanação com redução do tamanho do grânulo do mineral.

O mecanismo de transporte de ^{222}Rn no espaço poroso está relacionado com dois fenômenos – difusão e advecção. O coeficiente de difusão quantifica a facilidade de deslocamento do ^{222}Rn na fração gasosa de um meio poroso e os principais fatores que a influenciam em meios porosos são características inerentes ao meio, tais como porosidade e umidade (SUN; GUO; ZHUO, 2004). Já a advecção possibilitará, embora de forma mais amena, o transporte de ^{222}Rn através da movimentação do meio poroso decorrente de alterações de temperatura e pressão atmosférica.

Rogers e Nielson (1991) estabeleceram uma relação empírica para determinação do coeficiente de difusão de ^{222}Rn com dependência da umidade e porosidade do meio em relação ao coeficiente de difusão de ^{222}Rn no ar ($1{,}1\ 10^{-5}\ m^2s^{-1}$), embora este valor somente tenha sido observado para temperatura de 10 ^{o}C (UNDERHILL, 1993).

Em trabalho objetivando medidas de ^{222}Rn indoor, Cohen & Nason (1986) utilizaram a técnica de adsorção em carvão, porém, introduziram na face aberta do coletor uma barreira de difusão para ^{222}Rn, ou seja, uma película fina de nylon, reduzindo o efeito da umidade ou do vapor d'água que tende a ocupar os locais de sorção do ^{222}Rn.

Burnett, Cable e Chantonl (1995) utilizaram um coletor de 0,073 m de diâmetro e 0,025 kg de carvão ativado contendo bolsas para adsorção de vapor d'água em amostragens de exalação de ^{222}Rn. Os autores observaram uma redução de eficiência de adsorção pouco maior que 50 % e atribuíram a variação percentual de 10 % à incerteza da técnica. A redução de eficiência de adsorção de ^{222}Rn, decorrente da inserção de elementos seletivos de adsorção, é compensada pela adição de um termo de eficiência correspondente na fórmula de cálculo da exalação.

Pojer et al. (1990) mostraram que, mesmo utilizando barreira de difusão para coletores a carvão, houve influência significativa da temperatura e umidade na sorção de ^{222}Rn pelo carvão. Seus resultados corroboraram a teoria elaborada por Cohen & Cohen (1983) para adsorção de ^{222}Rn em carvão, apesar deste trabalho não ter considerado o emprego de barreira de difusão nos coletores.

Stranden, Kolstad e Lind. (2001) observaram que a adsorção de ^{222}Rn em carvão tende a aumentar com a umidade e a temperatura até 28% e 22 ^{o}C, respectivamente, diminuindo acentuadamente após estes valores.

Vários tipos de materiais são utilizados na confecção do corpo dos coletores para determinação da exalação de ^{222}Rn. No método oficialmente aceito e recomendado pela USEPA (USEPA, 2008a), o material de confecção é o PVC e o coletor tem 0,25 m de diâmetro com massa de carvão ativado igual a 170 g (HARTLEY; FREEMEN, 1986).

No método descrito por Countess (1976), utiliza-se de metal como invólucro, que, originalmente, é um filtro de ar a carvão empregado pelo exército americano (U.S. Army M11) com 6 cm de altura por 0,0087 m^2 de área de seção transversal. O autor realizou várias medidas e calibrou o coletor em ambiente de alta concentração

de radônio e não realizou homogeneização do carvão após a amostragem. Embora seja um trabalho pioneiro, será demonstrada nesta tese a necessidade de realizá-la.

Spehr e Johnston (1983), utilizando um coletor de 7 cm de diâmetro por 6 cm de altura, demonstraram que o emprego de um dispositivo de mesma dimensão contendo sílica gel disposto entre o corpo de carvão e a superfície de exalação reduziu em 55 % a eficiência de adsorção de um coletor a carvão ativado.

2.6 Dosimetria de ^{222}Rn e de seus filhos de meia-vida curta

A despeito do limite de dose efetiva para exposições internas (ingestão e inalação), a International Commission on Radiological Protection (ICRP), na publicação número 60 (ICRP, 1990), reduziu a dose efetiva comprometida para trabalhadores de 50 mSv ano^{-1} para 20 mSv ano^{-1} para período de cinco anos consecutivos, não devendo exceder 50 mSv em qualquer um deles. Particularmente, para o ^{222}Rn e filhos, a ICRP (ICRP, 2006) direciona os limites de dose para a ICRP 65 (ICRP, 1993).

No Brasil, a alteração de redução do limite de dose para trabalhadores foi realizada e consta na nova publicação da norma CNEN-NN-3.01 (CNEN, 2005a) ficando de acordo com os valores recomendados pela ICRP. Entretanto, não há uma norma da Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) que trate, especificamente, de limites para radônio e filhos como uma cadeia de decaimento radioativo, correlacionando radionuclídeo e produtos de decaimento. O limite constante em norma CNEN que quantifica a liberação de ^{222}Rn para a atmosfera em

instalações radioativas vale 110 Bq m^{-3} (CNEN, 1985), um valor derivado conservativo se comparado com o limite sugerido pela IAEA igual a 200 Bq m^{-3} (ICRP, 1993).

Os limites ocupacionais de dose para radônio e/ou filhos são tomados de acordo com uma taxa de respiração de 1,2 m^3 h^{-1} e uma unidade especial é definida a partir do Limite de Incorporação Anual (LIA) ou limite anual de exposição à energia alfa potencial – o Working Level Month e vale 4,0 WLM ano^{-1} (IAEA, 1996). Esta unidade está fundamentada na energia que será emitida durante o decaimento dos filhos de ^{222}Rn, do ^{218}Po até ^{210}Pb, e vale 34710 MeV (5,56 nJ) por átomo de ^{222}Rn (ICRP, 1993).

A concentração máxima no ar para ^{222}Rn e filhos é 1,5 10^3 Bq m^{-3}, porém, o mesmo limite somente para ^{222}Rn é 1,5 10^5 Bq m^{-3} (ICRP, 1981). Esta diferença de duas ordens de grandeza ocorre devido à baixa reatividade do ^{222}Rn com os tecidos das vias respiratórias – fato não observado para seus filhos que, normalmente, estão associados com partículas de poeira ou núcleos de condensação. Esta associação desequilibra a atividade de ^{222}Rn no ar com qualquer de seus filhos, tornando-se necessário introduzir um fator de equilíbrio (F) que permite melhor avaliar a dose devido a filhos de ^{222}Rn. F é definido como a razão entre a concentração de atividade no ar dos filhos de ^{222}Rn e a sua própria concentração ($F=C_f/C_{Rn}$) (USNCEAR, 2000). Valores típicos estão entre 0,5 a 0,7 para ambientes externos, podendo variar de 0,2 a 1,0 dependendo de parâmetros ambientais (UNSCEAR, 2000).

Da mesma forma que na dosimetria interna convencional têm-se coeficientes de conversão de exposição anual para radônio e filhos é igual a 4,45 10^{-3} mJ h $m^{-3}(Bq\ m^{-3})^{-1}$ ou 1,26 10^{-3} WLM $(Bq\ m^{-3})^{-1}$ ou coeficiente de conversão

de dose efetiva por unidade de exposição valendo 1,4 mSv (mJ h m^{-3})$^{-1}$ ou 5 mSv (WLM)$^{-1}$ e, portanto, tem-se uma relação direta entre a dose máxima anual de 20,0 mSv e a energia alfa potencial, ou seja, 4,0 WLM. O mesmo fator pode ser aplicado na limitação de dose de 50,0 mSv para um ano qualquer dentre 5, desde que a média não exceda 20,0 mSv (CNEN, 2005a).

Estes limites dosimétricos são derivados de dados epidemiológicos e devem ser conduzidos pareados com duas importantes condições de contorno da dosimetria de radônio e filhos de meia-vida curta, ou seja, o tempo de exposição e o fator de equilíbrio entre as atividades do radionuclídeo pai e filhos. Os tempos anuais considerados são iguais a 7000 h para ambientes internos e 2000 h para exposição ocupacional, juntamente com um fator de equilíbrio igual a 0,4 (ICRP, 1993) – na ausência de dados que os alterem.

A USEPA considera como limite a taxa de exalação de ^{222}Rn igual ou superior a 20 pCi m^{-2} s^{-1} ou 0,74 Bq m^{-2} s^{-1} (USEPA, 2008b). Valores de exalação de radônio em bota-foras e bacias de rejeitos sem coberturas são maiores que este limite, 10 a 40 Bq m^{-2} s^{-1}, para áreas da Western Uranium (USA) e 10 Bq m^{-2} s^{-1} em Andajur (Espanha), embora valores menores que 0,74 Bq m^{-2} s^{-1} tenham sido observados (IAEA, 1992).

Oliver & Khayrat (2001) avaliaram a distribuição espacial de radônio em solo da Inglaterra. O trabalho foi direcionado para o ^{222}Rn, justificado pelo percentual de 47% na dose natural total para ^{222}Rn e filhos contra 4% devido a ^{220}Rn e filhos (NRPB, 1990).

Na dosimetria de ^{222}Rn, é amplamente utilizada a técnica de detectores de traço nuclear ou Solid State Nuclear Track Detector – SSNTD, embora tenham ocorrido tentativas de quantificação de taxa de exalação em solos utilizando o

princípio de detecção (SHAFI; REHMAN; RAHMAN, 2006). Eles são constituídos de pequenas placas de polímeros sensíveis à radiação alfa, fixados no interior de câmaras de difusão, confeccionadas em polímero dopado com material condutor para evitar o fenômeno denominado de “plate-out” (NEMAN, 2005).

A evidência da correlação entre propriedades físicas das partículas e do meio poroso com a taxa de exalação de ^{222}Rn permite afirmar que é possível interferir na taxa de exalação interagindo diretamente com sua causa, ou seja, as propriedades responsáveis pela concentração e transporte de ^{222}Rn no meio poroso. Como consequência, a utilização de meios porosos com características dificultadoras do transporte de ^{222}Rn do meio gerador para a atmosfera pode ser conjeturada.

2.7 A mitigação da taxa de exalação

A utilização de coberturas de solo fértil, solo argiloso, argila, areia ou cascalho para drenagem e/ou manta asfáltica representa os principais recursos para atenuar os dois principais problemas existentes em bacias de rejeito – exalação de radônio e percolação de água. A questão da erosão da cobertura é minimizada através da adição de cobertura vegetal, evitando o contato direto da camada superficial com as gotas de chuva, aparecimento de enxurrada e ressuspensão do material depositado na bacia de rejeitos radioativos (IAEA, 1990).

De maneira geral, uma combinação de materiais na cobertura propicia um melhor resultado final, tanto no aumento do tempo de residência do radônio na bacia

de rejeitos quanto na atenuação da infiltração de água. O número de camadas, a espessura de cada uma e as possíveis combinações entre elas são dependentes das características de cada material com relação a coeficientes de difusão de radônio e percolação de água (IAEA, 1992).

Gatzweiler et al (2001) destaca que a estabilidade geomecânica do sistema a ser recoberto deve ser longa, sugerindo inclinações inferiores a 1:3 e tempo mínimo aceitável de 200 anos de durabilidade. No que tange a critérios hidrológicos, destaca o conhecimento pregresso de precipitação pluviométrica para estudos de modelagem. Da mesma forma, chama atenção para a infiltração de água e oxigênio, enfatizando que o sistema de cobertura é o principal meio de sua redução. Do ponto de vista ambiental, a cobertura vegetal pode significar ganho expressivo na durabilidade e estabilização da cobertura, porém a penetração de raízes pode criar caminhos preferenciais para a percolação de água e oxigênio.

Hart & Lewis (1983) relataram que a melhor opção de cobertura de bota-foras para redução da difusão de ^{222}Rn foi argila com 15% de umidade. Usando uma combinação de argila, cascalho e solo fértil, conseguiram reduzir a exalação em duas ordens de grandeza. Leoni et al (2004) observaram em estudo teórico que esta redução é possível, porém está intimamente relacionada com o conteúdo de água do material utilizado como cobertura do rejeito.

O United States Department of Energy - USDE (1978) obteve para rejeito coberto com areia e bentonita razões de atenuação de 2 ordens de grandeza, porém, a espessura da camada de areia e de bentonita foi igual a 3,89 m e 1,92 m, respectivamente. Contudo deve ser considerado que estes valores são viáveis apenas para pequenas áreas de cobertura.

Nielson, Rogers e Rich (1983), em três minas de urânio desativadas, estudaram o comportamento de 3 tipos de solos obtidos próximos às minas e utilizados como cobertura em 4 colunas de solo-rejeito. Nestas, os tipos de solo usados foram: 1 - silte com agregado de argila na coluna 1 (h_{s1} = 4,35 m), 2 - arenoso com traços de silte na coluna 2 (h_{s2} = 4,35 m) e 3 - solo argiloso para as colunas 3 e 4 (h_{s3} = 4,85 m e h_{s4} = 3,35 m) e os respectivos teores de umidade de compactação foram 13,2 %, 11,0 % e 13,9 %. As compactações relativas ao ensaio de Proctor normal resultaram todos os valores inferiores a 86 %. Um resultado estranho foi a razão de atenuação da coluna número 3 ser 20 vezes menor que a razão de atenuação da coluna número 4, uma vez que foram montadas com o mesmo solo. Os autores relataram que foram utilizados coletores de radônio de grande área (0,16 m^2) e pequena área (0,005 m^2) contendo, ambos, uma camada de carvão ativado de 0,01 m.

Ferry et al (2001) avaliaram a taxa de exalação de ^{222}Rn em um lisímetro medindo 4 m x4 m e altura igual a 2,5 m e em um bacia medindo 14 m x 15 m e altura de 1 m. Ambos foram montados com rejeito radioativo de uma mina de urânio com concentrações de atividade de ^{226}Ra igual a 60000 ± 15000 Bq kg^{-1}. O lisímetro foi cheio somente com rejeito radioativo, porém, a bacia foi coberta por uma camada de 1,0 m de rocha britada e moída em granulometria inferior a 50 mm, proveniente da mesma indústria fornecedora do rejeito radioativo. Utilizando valores estimados de coeficientes de emanação, a autora determinou experimentalmente e teoricamente a efetividade da cobertura de 1,0 m da bacia como igual a 3 e 3,3, respectivamente.

O tipo de disposição utilizada na bacia descrita anteriormente fundamenta-se na dificuldade encontrada por países do hemisfério norte em estabilizar coberturas

convencionais empregando solos ou até mesmo coberturas compostas. Estas são formadas por uma variedade de interposições entre barreiras de exalação-percolação – preferencialmente um solo argiloso, seguido de uma geomembrana, uma camada de drenagem, outra geomembrana protetora da camada de drenagem e, por último, uma camada de solo fértil (BENSON, 1999).

Benson (1999) ressalta o problema do aumento da infiltração de água devido à adversidade do clima das regiões estudadas. Dois fatores se destacam – invernos com temperaturas congelantes e períodos de secas intensas, ocasionado congelamento e ressecamento da camada de cobertura. O autor atribui à alternância entre congelamento e ressecamento no solo o aumento da condutibilidade hidráulica com o passar dos anos, resultando em alterações físicas do arranjo da cobertura através de rachaduras verticais e horizontais.

Segundo Souza, Borma e Mendonça (2003), cobertura seca é a denominação dada ao sistema de multicamadas destinado à estabilização físico-química de locais de disposição definitiva de rejeitos industriais. Os autores consideram como imprescindível a existência de, pelo menos, uma camada de material argiloso, reconhecidamente importante por minimizar o fluxo de água e oxigênio para o interior da bacia de rejeitos.

Fernandes (1997) estudou o caso da UTM - Caldas e considerou como estratégia adequada o recobrimento da superfície da bacia de rejeitos com uma camada de 1,0 m de espessura de material com coeficiente de difusão do Rn de 10^{-8} m^2/s e, para as pilhas de bota-foras, uma camada de 1,0 m de espessura de material com coeficiente de difusão do O_2 de 10^{-9} m^2/s, embora, estas afirmativas não estejam alicerceadas por dados experimentais consistentes.

Leoni, Almeida e Fernandes (2004) estudaram o comportamento da exalação de ^{222}Rn na UTM – Caldas e estimaram a partir de um software denominado RADON versão 1.0 um valor de espessura de cobertura igual a 0,60 m com dados de entrada estimados – porosidade, densidade, coeficiente de difusão e emanação e conteúdo de água para o rejeito e solo de cobertura.

Mediante o que foi exposto nesta seção, verifica-se que não há relatos na literatura descrevendo a validação da metodologia utilizando carvão ativado. Portanto, neste trabalho, além da abordagem minuciosa do comportamento do coletor de radônio, da medida da taxa de exalação na área seca da bacia de rejeitos da UTM – Caldas e do estudo de solo como material de cobertura da bacia, pretende-se, ainda, preencher a lacuna correspondente à validação do referido método para a determinação da taxa de exalação de radônio.

3. MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 O coletor de ^{222}Rn

O coletor de ^{222}Rn está fundamentado nas propriedades adsorvedoras do carvão ativado. A opção por utilizá-lo foi de caráter prático, pois, o ambiente de interesse – a bacia de disposição de rejeitos industriais ou radioativos da UTM – Caldas apresenta dois locais passíveis de estudo e o delineamento experimental impôs um mínimo de 400 estimativas de exalação. Sendo assim, a metodologia de amostragem utilizando carvão ativado foi adequada ao delineamento experimental e o coletor foi dimensionado de maneira a apresentar maior agilidade durante seu armazenamento, transporte, amostragem e determinação da atividade da amostra.

3.1.1 O carvão ativado

O carvão ativado utilizado era granulado de origem vegetal, Marca TANAC – referência 7500. Originalmente, o carvão possuía granulometria situada entre 2,362 mm e 0,544 mm. Para utilização neste experimento, a granulometria foi alterada ficando entre 0,991 mm e 1,168 mm e sua densidade foi medida e ficou igual a 227 kg m^{-3}.

3.1.2 A preparação do carvão ativado para amostragem

Para garantir as propriedades de adsorção, o carvão foi mantido em estufa, dentro de bandejas de alumínio a 105 ^{o}C por 24 h e, então, colocado em outra estufa de armazenamento a 72 ^{o}C por, no mínimo, 24 h. Este procedimento foi utilizado para deadsorção de vapor d'água e ^{222}Rn do carvão, resultando ainda na maximização de liberação dos locais de adsorção e minimização da contagem de fundo do carvão para ^{222}Rn. Após este período de "limpeza", o carvão, estava pronto para uso, ou seja, para montagem do coletor.

Os valores de temperatura acima foram obtidos a partir de 3 massas de cerca de 0,3 kg de carvões previamente carregados de ^{222}Rn e vapor d'água, colocadas em estufa a temperaturas crescentes iguais a 50 ^{o}C, 67 ^{o}C, 70 ^{o}C, 79 ^{o}C e 90 ^{o}C. O tempo entre variações de temperatura foi de 24 h e as massas das amostras foram constantes a partir do final da medida de 70 ^{o}C.

Para acelerar o processo de deadsorção de ^{222}Rn e vapor d'água, foi empregada outra estufa com temperatura de 105°C, na qual carvões pré-utilizados eram mantidos por, pelo menos, 24 h antes de irem para a estufa de armazenamento.

3.1.3 A geometria do coletor de ^{222}Rn

A utilização de coletor de radônio com carvão ativado é antiga, porém, dois trabalhos científicos destacam-se. O primeiro (Countess, 1976), apesar de sua importância, tem apenas uma página da Health Physics e sugere a utilização de um filtro de máscaras de proteção para retenção de gases tóxicos ou radioativos do exército americano (US Army M11 – gas canister) contendo carvão ativado. Sua utilização esbarra em dois entraves, a importação e a ausência de um sistema de acoplamento do filtro ao meio exalante. Além disto, será demonstrada neste trabalho a necessidade de homogeneização do carvão após a amostragem, uma vez que a distribuição de ^{222}Rn no coletor após uma amostragem não possui a mesma distribuição do padrão de trabalho de medida da atividade gama.

Este pequeno artigo deu origem a outros que estudaram desde coletores similares empregando o mesmo adsorvente a modelagens que tentaram esclarecer o fenômeno e o relacionaram com propriedades físicas do carvão e dimensões do coletor (STRONG; LEVINS, 1978). O segundo trabalho é regulatório e foi estabelecido pela Agência Americana de Proteção Ambiental e normatiza procedimentos para realização de amostragens e construção do coletor de ^{222}Rn (HARTLEY; FREEMAN, 1986), denominado nesta tese coletor de grande área. As principais vantagens deste trabalho consistem em estabelecer critérios e metodologia de amostragens para bota-foras e bacias de rejeitos industriais (USEPA, 2008a).

Apesar das vantagens oferecidas pela normatização do coletor de grande área, suas dimensões (0,25 m de diâmetro externo, área de amostragem de

0,0475 m^2 e 12 cm de altura) dificultam a execução de amostragens de campo, principalmente seguindo as normas de amostragens da USEPA, ou seja, quando o número de amostras é grande.

O coletor desenvolvido por Hartley e Freeman (1986) foi utilizado nos ensaios de medidas de taxa de exalação de ^{222}Rn. Seguindo os procedimentos estabelecidos, após a coleta, havia necessidade de homogeneizar o carvão ativado, realizar contagem de atividade gama no carvão e normalizar a atividade da amostra, pois a massa de amostra era diferente da massa de contagem. A quantificação da atividade de ^{222}Rn foi realizada por espectrometria gama em um pote de acrílico (chamado “pote 607”, devido ao seu código de fabricação) com geometria cilíndrica de altura e raio iguais a 4,5 cm.

Observando as condições de contagem, foi avaliada a utilização de um coletor de dimensões idênticas, cuja vantagem, a princípio, seria apenas a paridade dimensional com a geometria de contagem ou padrão (Figura 1 e 2). Desta forma, o coletor construído e utilizado para todas as amostragens de ^{222}Rn foi similar ao descrito por Countess (COUNTESS, 1976), confeccionado em alumínio e contendo 125 g de carvão ativado.

Geometricamente, o coletor desenvolvido para testes laboratoriais e amostragens de campo é um cilindro de alumínio fechado em um de seus extremos, de altura igual a 7,5 cm, raio igual a 4,5 cm e, consequentemente, área de base igual a 0,00636 m2. Quando uma massa de carvão de 125 g era depositada no coletor, resultava uma altura de carvão de 4,5 cm. Sobre o carvão era colocada uma manta geotêxtil e uma tela de aço de formato circular, de raios iguais a 4,5 cm e 4,4 cm, respectivamente. Uma mola de aço, disposta convenientemente no interior do coletor, impedia a movimentação do carvão nele contido (Figuras 1 e 2). Anexo a

este volume tinha-se um espaço de 1,0 cm de altura, limitado acima pela tela de aço e abaixo por 1,5 cm do cilindro utilizado para acoplar o coletor ao volume superficial do substrato de amostragem.

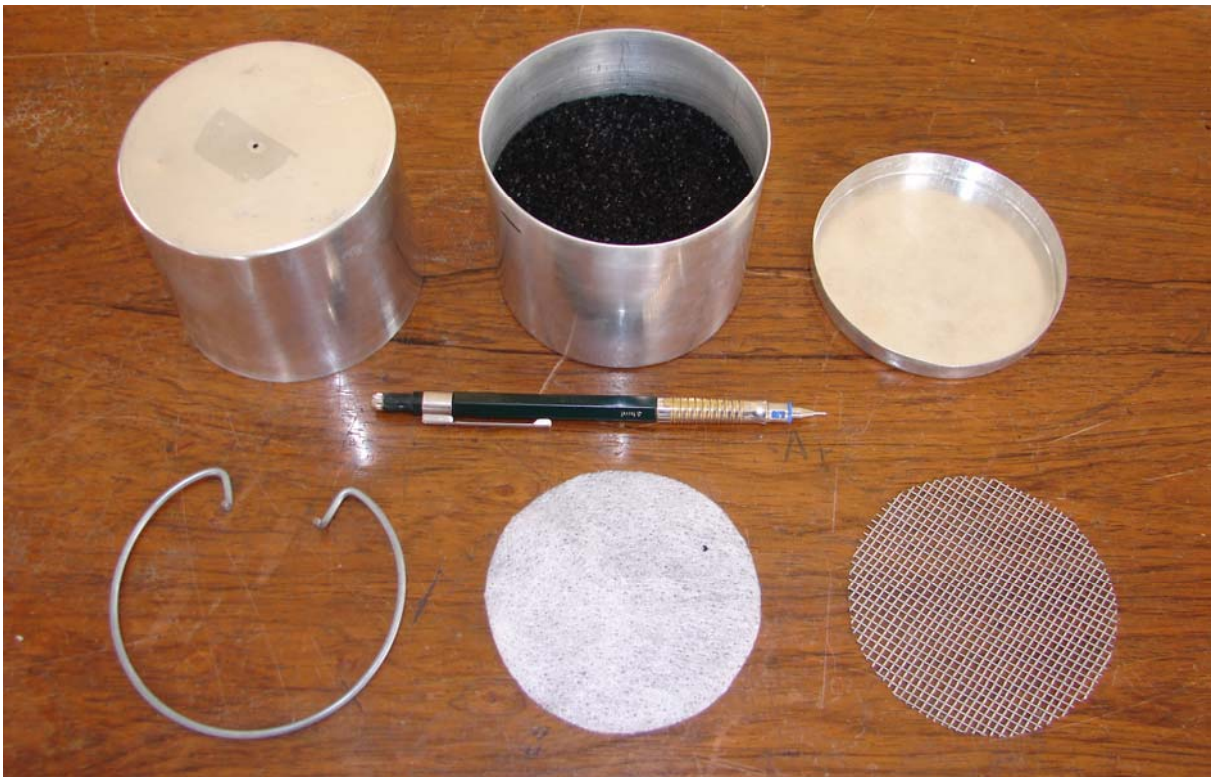

Figura 1. Coletor 607 de ^{222}Rn e seus componentes

As Figuras 1 e 2 apresentam foto e esboço dos componentes do coletor de ^{222}Rn – denominado coletor 607 devido à sua paridade geométrica com a geometria de contagem em detector gama de NaI.

A Figura 3 apresenta a foto dos coletores 607 e de grande área, juntamente com os componentes de cada um deles. A diferença dimensional é clara e a utilização do coletor de grande área em amostragens que exijam grande número de coletores fica dificultada devido ao seu tamanho.

Figura 3. Coletores de ^{222}Rn – 607 e grande área e seus componentes

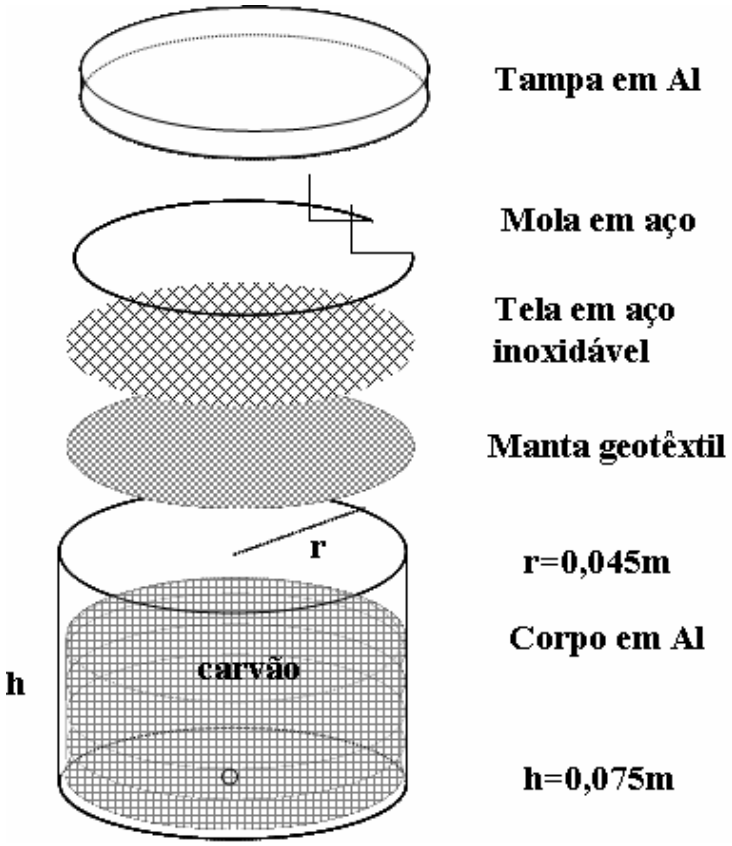

Figura 2. Esboço do coletor 607 de ^{222}Rn e seus componentes

3.1.4 O procedimento de montagem do coletor de ^{222}Rn

A higiene de pré-montagem significava preparar as partes, isto é, limpar com álcool e secar o coletor e seus componentes, exceto a manta geotêxtil, utilizar carvão limpo ou isento de vapor d'água e ^{222}Rn conforme descrito na subseção 3.1.2 - A preparação do carvão ativado para amostragem. De uma maneira simples, esta higiene foi realizada de forma a obter-se um coletor de ^{222}Rn isento de ^{222}Rn e vapor d'água.

A montagem era iniciada com a separação de igual número de corpos de coletores, mantas geotêxtil, telas de aço e molas de fixação na bancada de montagem. Em seguida, era retirada uma bandeja de carvão ativado do forno de armazenamento e medida massa igual a 125,00 g de carvão para cada coletor. Esta quantia era depositada no corpo do coletor e por cima eram dispostas sequencialmente a manta geotêxtil, a tela e a mola de aço. Após conclusão da montagem, os coletores eram novamente colocados no forno de armazenamento a 72 ^{o}C por, pelo menos, 20 horas antes do início da amostragem, evitando, desta forma, aumentar a contagem de fundo devido à exposição do carvão ao ambiente de montagem.

Para avaliar o efeito da manta geotêxtil na base do coletor, foram realizadas amostragens simultâneas que resultaram em valores iguais para concentração de ^{222}Rn nos dois tipos de coletores com e sem manta geotêxtil, demonstrando não interferência da presença da manta na concentração de ^{222}Rn no carvão ativado.

3.2 A taxa de exalação de ^{222}Rn

A quantificação da taxa de exalação de ^{222}Rn pode ser vista como a tentativa de medir um fenômeno peculiar da natureza. Esta afirmativa pode ser justificada pela meia-vida e camada de valência deste radionuclídeo. A meia-vida não é tão pequena que lhe permita decair e permanecer no local de origem, nem grande que possibilite ser um componente representativo da atmosfera terrestre. Porém, tem dimensões que lhe permite migrar do local de origem até locais de convívio humano e, ao decair, dar origem a uma pequena seqüência de decaimentos radioativos que, por sua vez, pode representar um problema à saúde humana. Na verdade, o ^{222}Rn não causa dano radiológico significativo, porém, atua como veículo dispersor de seus filhos alfa e beta emissores.

O parágrafo anterior justifica a necessidade de um tratamento especial para a quantificação do ^{222}Rn. Primeiro, é um gás nobre e, portanto, não é quimicamente reativo – principal motivo da amostragem com carvão; segundo, a atividade é alterada no tempo durante os períodos de amostragem, descanso pós-amostragem e contagem da atividade da amostra. Portanto, necessita que sejam realizadas correções de atividade durante cada uma destas etapas, o que é analisado nas 4 próximas subseções.

3.2.1 A amostragem de ^{222}Rn

Embora a amostragem propriamente dita seja caracterizada pelo tempo de contactação entre o coletor e a superfície de exalação, deve-se considerar que existem fatores que podem contribuir para elevar a contagem final ou totalização da atividade de ^{222}Rn proveniente da exalação na superfície de amostragem. A execução correta dos procedimentos de preparação do carvão ativado para amostragem e de montagem do coletor resulta em um coletor passivo isento de ^{222}Rn e com máxima capacidade de adsorção.

A adsorção de radônio e vapor d'água é iniciada no instante em que o coletor montado é retirado do forno de espera (T = 70°C) para amostragem. A partir deste instante, o carvão irá adsorver átomos de ^{222}Rn e moléculas de vapor d'água que atravessem a superfície de amostragem (tela de aço e manta geotêxtil). Para minimizar adsorções indesejadas no coletor durante o trajeto entre o laboratório e o local de amostragem, era adicionada uma tampa de alumínio na face de amostragem do coletor e o conjunto armazenado em sacos plásticos.

No local de coleta, os coletores eram identificados com os códigos de cada ponto de amostragem, o momento (data e hora) de início de amostragem era anotado no corpo do coletor, a tampa era retirada e ele era inserido na superfície, iniciando a amostragem.

O coletor apresentava um pequeno furo de 2,0 mm de diâmetro na sua face fechada e prestava-se para evitar o aparecimento de correntes de ar devido ao movimento de inserção do coletor na superfície de exalação. A forma correta de dispor o coletor no solo ou rejeito é tal que ele deve ser girado axialmente e de

maneira firme e bem lenta, de maneira que penetre 15 mm além da fronteira representada pela superfície de exalação de ^{222}Rn. Para finalizar, o pequeno furo era fechado com fita adesiva plástica para evitar entrada de vapor d'água e ^{222}Rn pela parte superior do coletor.

A amostragem era encerrada quando o coletor era retirado do solo ou rejeito. Neste instante, a parte do corpo que atravessou a superfície de exalação era limpa com papel absorvente umedecido em álcool e recebia a tampa de transporte, o instante final era anotado no corpo do coletor e, então, era embalado em saco plástico e encaminhado para o laboratório para quantificação da atividade de ^{222}Rn.

Durante a amostragem, o coletor adsorve, no carvão ativado, uma atividade de ^{222}Rn correspondente à exalação da área da base do coletor. A atividade acumulada no coletor durante a amostragem obedece à equação 1.

$$\frac{dA}{dt} = JS - \lambda A \qquad (1)$$

cuja solução é:

$$A_{^{222}Rn} = \frac{JS}{\lambda}(1 - e^{-\lambda \cdot t_a}) \qquad (2)$$

onde:

$\lambda = \frac{\ln 2}{T_{1/2}}$ = constante ou probabilidade de decaimento do ^{222}Rn (λ = 2,098x10^{-7} s^{-1})

$A_{^{222}Rn}$ = atividade de ^{222}Rn adsorvido no carvão ativado (Bq)

J = taxa de exalação na área de amostragem (Bq m^{-2} s^{-1})

S = área de amostragem (0,00636 m^2 para o coletor 607)

e = base dos logaritmos naturais (2,7182818)

t_a = tempo de amostragem

$T_{1/2}$ = meia-vida do radionuclídeo (s)

Uma condição importante e que foi assumida para todas as amostragens é que, durante uma amostragem, todo o ^{222}Rn exalado através da superfície de amostragem é adsorvido no carvão ativado do coletor. Esta condição é válida desde que existam locais de adsorção para ^{222}Rn no carvão do coletor e, portanto, deve-se zelar para que a coadsorção de vapor d'água não a invalide.

Durante uma amostragem, a atividade $A_{^{222}Rn}$ será adsorvida de maneira mais intensa nas camadas inferiores de carvão devido à maior proximidade destas com a superfície de exalação. Se isto ocorrer, haverá uma distribuição não homogênea da atividade de ^{222}Rn no carvão ativado do coletor durante a amostragem.

3.2.2 A preparação para contagem

No momento de encerramento da amostragem, tem início o decaimento do ^{222}Rn coletado. Ele decai por emissão alfa de acordo com a cadeia de decaimento da Figura 4 e sua atividade em função do tempo, após o encerramento da amostragem, será dada pela equação 3.

$$A_{^{222}Rn} = A_{0^{222}Rn} e^{-\lambda \cdot t_e} \quad (3)$$

onde:

$A_{^{222}Rn}$ = atividade de ^{222}Rn adsorvido no carvão ativado (Bq)

$A_{0^{222}Rn}$ = atividade de ^{222}Rn adsorvido no carvão ativado no instante final de amostragem (Bq)

t_e = tempo de espera (s)

Em decorrência do que foi exposto na subseção 3.2.1 A amostragem de ^{222}Rn, a atividade de ^{222}Rn do coletor tem distribuição não homogênea e, devido à distribuição homogênea do padrão de contagem, faz-se necessário homogeneizar a

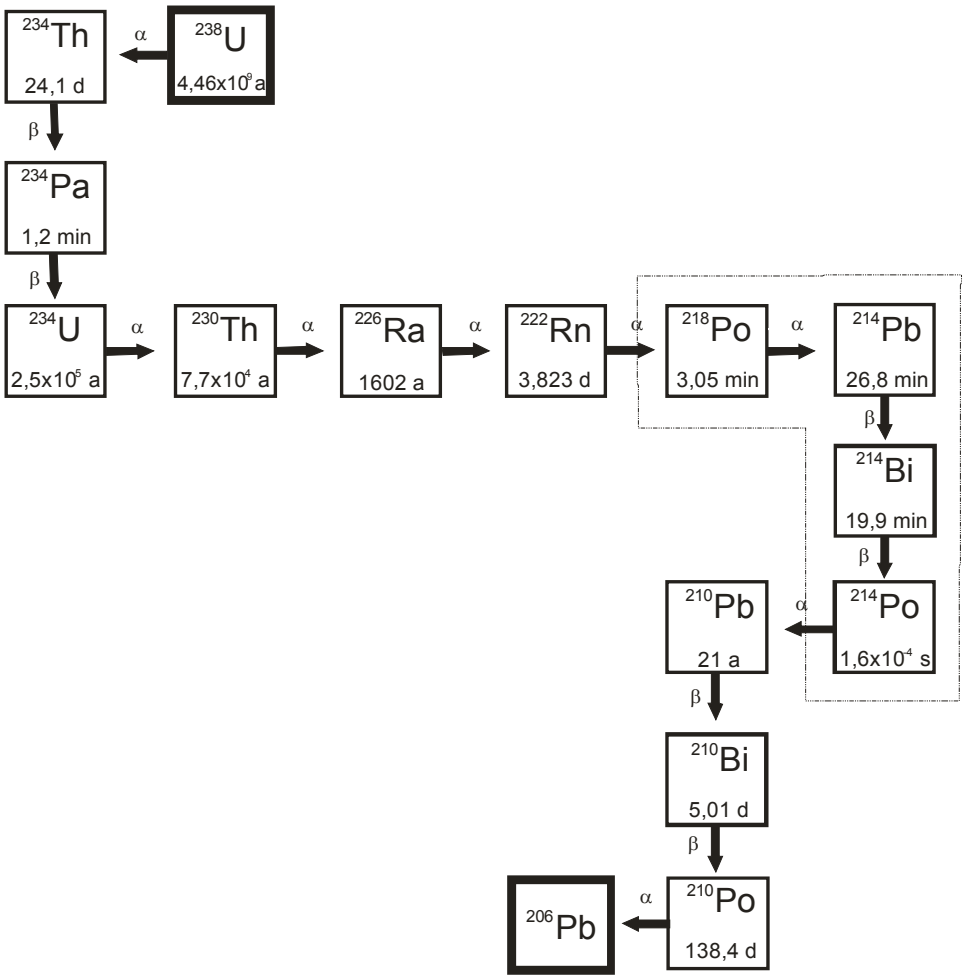

Figura 4. Cadeia de decaimento radioativo do urânio, em destaque os filhos de meia-vida curta do ^{222}Rn

amostra para a devida quantificação.

A homogeneização foi realizada em laboratório seguindo o procedimento: o conteúdo de um coletor era passado por um quarteador (tipo Jones) colocado dentro de uma forma de alumínio por três vezes (Figura 5).

Em seguida, o carvão era depositado em uma vasilha, devidamente tarada e sua massa medida em balança com precisão de duas casas decimais. Finalmente, a amostra era acondicionada na geometria do pote 607 e disponibilizada para contagem. A massa medida além das 125 g iniciais do coletor correspondia à massa de vapor d'água adsorvida no carvão.

3.2.3 A quantificação da atividade de ^{222}Rn na amostra – a contagem

O ^{222}Rn ($T_{1/2}$ = 3,823 d) decai para ^{218}Po ($T_{1/2}$ = 3,05 min) e este para ^{214}Pb ($T_{1/2}$ = 26,8 min), ambos por emissão alfa. Este último decai para ^{214}Bi ($T_{1/2}$ = 19,9 min) que decai para ^{214}Po ($T_{1/2}$ = 1,6 10^{-4} s), ambos por emissão beta. O ^{214}Po decai para ^{210}Pb ($T_{1/2}$ = 21 a) que encerra a seqüência de decaimentos de meia-vida curta dos filhos do radônio.

Figura 5. Quarteador tipo Jones e acessórios usados na homogeneização de carvão ativado

Bateman (1910 apud STEPHENSON, 1958, p. 28), desenvolveu uma expressão algébrica para determinar a atividade radioativa em uma cadeia contendo n radioisótopos, com constantes de decaimento iguais a λ_n. Assim, considerando a cadeia:

$$P \xrightarrow{\lambda_1} Q \xrightarrow{\lambda_2} R \xrightarrow{\lambda_3}, \cdots etc \tag{4}$$

então, o número de átomos do enézimo componente da cadeia em função do tempo será dado por:

$$\frac{N_n}{P_1} = C_1 e^{-\lambda_1 t} + C_2 e^{-\lambda_2 t} + C_3 e^{-\lambda_3 t} + \cdots + C_n e^{-\lambda_n t} \tag{5}$$

onde

$$C_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_{n-1}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)\cdots(\lambda_{n-1} - \lambda_1)}$$

$$C_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)\cdots(\lambda_{n-1} - \lambda_2)}$$

$$C_3 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \cdots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_3)(\lambda_2 - \lambda_3)\cdots(\lambda_{n-1} - \lambda_3)}$$

P_1 = número de átomos do radionuclídeo pai.

A atividade do radionuclídeo pai em um tempo $t > t_0$ será dada por:

$$P = P_1 e^{-\lambda_1 t} \tag{6}$$

e o segundo membro da cadeia será:

BATEMAN, H.. **Proceedings of the Cambridge Philosophical Society**, v. 15, p. 423, 1910.

$$\frac{Q}{P_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} + \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t} \tag{7}$$

ou

$$Q = \frac{\lambda_1 P_1}{\lambda_2 - \lambda_1} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \tag{8}$$

Assim, se a meia-vida do pai é maior que a do filho e considerando um tempo tal que $e^{-\lambda_2 t}$ seja negligenciável em relação a $e^{-\lambda_1 t}$, então a equação 8 reduz-se a:

$$\frac{Q}{P} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \tag{9}$$

Se ocorrer ainda $\lambda_1 << \lambda_2$ então, a equação 9 torna-se:

$$\frac{Q}{P} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2}$$ ou

$$\lambda_1 P = \lambda_2 Q = \lambda_3 R = \cdots etc \tag{10}$$

Esta condição em uma cadeia radioativa é chamada equilíbrio secular e, nela, ocorre a igualdade de atividade entre os radionuclídeos que a compõem.

Os valores de meia-vida dentro da pequena cadeia formada pelo ^{222}Rn e seus filhos de meia-vida curta permitem que seja atingido o equilíbrio secular entre o ^{222}Rn e seus filhos de meia-vida curta em 7 meias-vidas da maior delas – $T_{1/2}$(^{214}Pb) = 26,8 min. Portanto, para que a atividade de ^{222}Rn seja igual à atividade de qualquer um de seus filhos devem-se aguardar 185 minutos.

Nesta pequena série de decaimentos, existem algumas emissões gama, destacando-se a do ^{214}Bi com energia de 609,32 keV (γ = 46,1 %) e duas do ^{214}Pb uma de 351,99 keV (γ = 37,1 %) e a outra de 295,22 keV (γ = 19,2%), que podem ser utilizadas para quantificar a atividade alfa do ^{222}Rn, resguardando-se a condição de equilíbrio mencionada anteriormente.

A quantificação de ^{222}Rn para os dois tipos de coletores utilizados neste trabalho foi realizada através da emissão gama do ^{214}Bi. Na escolha, foi considerado o maior isolamento do pico no espectro de energia e a maior fração de emissão. O fator isolamento do pico foi considerado em virtude de ter sido utilizado um cristal de NaI (3x3 polegadas) e eletrônica associada, marca Ortec, nas contagens de atividades das amostras.

As determinações de atividade alfa do ^{222}Rn ou gama do ^{214}Bi nas amostras coletadas foram realizadas após a obtenção de equilíbrio secular, sempre com tempo de espera (intervalo entre o fim da amostragem e início da contagem) maior que 185 minutos através da equação 11.

$$A_{^{222}Rn} = A_{^{214}Bi} = \frac{C\lambda}{\varepsilon\gamma(1 - e^{-\lambda \cdot t_c})} \qquad (11)$$

onde

$A_{^{222}Rn}$ = atividade de ^{222}Rn na amostra (Bq)

$A_{^{214}Bi}$ = atividade de ^{214}Bi na amostra (Bq)

C = contagem líquida no pico do ^{214}Bi (cps)

λ = constante de decaimento do ^{222}Rn ($2{,}098 \times 10^{-7}$ s^{-1})

ε = eficiência de detecção (cps Bq^{-1})

γ = fração de emissão para o raio gama do ^{214}Bi (adimensional)

t_c = tempo de contagem (s)

O tempo de contagem foi sempre maior ou igual a 10 minutos. Os picos de 609,32 keV de todos os espectros foram analisados levando em consideração uma marcação de pico de -70 keV e +60 keV a partir de seu centro. A contagem líquida de eventos foi realizada considerando a média dos três valores dos canais laterais de cada pico automaticamente pelo software de aquisição (ScintiVision da Ortec). Além disso, antes de cada quantificação foi realizada a suavização do espectro obtido com intuito de melhorar a contagem líquida do pico.

O padrão de trabalho de ^{222}Rn ou ^{214}Bi foi obtido após distribuição homogênea de material certificado de ^{226}Ra (rastreável ao Instituto de Radioproteção e Dosimetria - IRD) em 0,125 kg de carvão ativado em vasilha de alumínio, dimensionalmente igual ao corpo do coletor, porém selada com cola tipo epóxi. A atividade de ^{222}Rn no padrão de trabalho foi determinada periodicamente após 40 dias da preparação, tempo suficiente para que o ^{222}Rn entrasse em equilíbrio com o ^{226}Ra.

3.2.4 A determinação da taxa de exalação de ^{222}Rn

A validade da equação 11 está condicionada ao equilíbrio secular entre o ^{222}Rn e ^{214}Bi durante a contagem da atividade gama deste último. Considerando que o decaimento do ^{222}Rn coletado obedece à equação 3 a partir do fim da amostragem

ou início do período de espera, até o decaimento total de ^{222}Rn da amostra, então, as equações 3 e 11 podem ser igualadas no instante inicial de contagem, resultando a atividade de ^{222}Rn coletada. Como a equação 2 quantifica a taxa de exalação da atividade de ^{222}Rn coletada, então, as equações 2, 3 e 11 substituídas entre si resultam na taxa de exalação J conforme a equação 12.

$$J = \frac{C\lambda^2}{S\gamma\varepsilon(1-e^{-\lambda t_a})e^{-\lambda t_e}(1-e^{-\lambda t_c})} \tag{12}$$

onde:

J = fluxo de ^{222}Rn (Bq m^{-2} s^{-1})

C = contagem líquida no pico do ^{214}Bi (cps)

λ = constante de decaimento do ^{222}Rn ($2{,}098 \times 10^{-7}$ s^{-1})

ε = eficiência de detecção para o pico do ^{214}Bi (cps Bq^{-1})

S = área do coletor (0,006358 m^2 para coletor 607 e 0,04751 m^2 para o coletor de grande área)

γ = fração de emissão da radiação gama do ^{214}Bi (0,461)

t_a = tempo de amostragem (s)

t_e = tempo de espera para equilíbrio secular entre fim de amostragem e início de contagem (s)

t_c = tempo entre início de amostragem e fim de contagem (s)

As condições de validade da equação 12 são as mesmas aplicadas àquelas que lhe deram origem e ela foi empregada para todas as determinações de taxa de exalação de ^{222}Rn realizadas neste trabalho nas amostragens utilizando o coletor 607 e o coletor de grande área.

3.3 Avaliação do coletor de ^{222}Rn

3.3.1 A distribuição de ^{222}Rn no coletor

Como foi mencionado na subseção 3.1.3 A geometria do coletor de ^{222}Rn, o volume útil de adsorção de ^{222}Rn é um cilindro de carvão ativado de raio e altura iguais a 4,5 cm. Adjacente a ele há um espaço com 1,0 cm de altura, pelo qual, durante a amostragem, todo adsorvato deverá passar para entrar no adsorvente. Esta geometria de amostragem fará com que o ^{222}Rn e vapor d'água ocupem preferencialmente os primeiros locais disponíveis de contactação, ou seja, a base do cilindro de carvão e, à medida que eles são ocupados, mais distantes da superfície de exalação ficam os locais disponíveis.

Esta descrição geométrica da dinâmica de adsorção de ^{222}Rn no coletor permite supor que a distribuição de adsorvatos no carvão durante a coleta seja um fenômeno transiente e, portanto, o carvão deve ser homogeneizado após a amostragem.

Para avaliar esta hipótese foi realizado um experimento no qual a massa de carvão ativado de um coletor 607 – 125 g foi dividida em cinco partes iguais de 25 g, separadas interpondo uma fina tela de aço inox entre elas, cortada no diâmetro interno do coletor, possibilitando, desta forma, a discretização da adsorção de umidade e ^{222}Rn no coletor.

O experimento consistiu em medir a taxa de exalação de ^{222}Rn no material descrito na subseção 3.3.4 A amostragem em ambiente controlado usando 2

coletores em tempos de amostragem que variaram de 1 dia até 4 dias. Ao final de cada amostragem, os coletores 607 eram desmontados e cada fração de 25 g de carvão foi devidamente embalada e após obtenção de equilíbrio secular a atividade gama do ^{214}Bi medida em detector gama de NaI.

3.3.2 A coadsorção de ^{222}Rn com vapor d'água

O raio atômico calculado do ^{222}Rn é 0,12 nm, ligeiramente menor comparativamente ao tamanho da molécula de água, 0,15 nm. Esta proximidade pode resultar no aparecimento de coadsorção, ou seja, a adsorção de moléculas de vapor d'água concomitante com átomos de ^{222}Rn. Apesar disto, a coadsorção de vapor d'água permitirá avaliar numericamente a capacidade adsortiva do carvão ativado, uma vez que a adsorção de átomos ou moléculas gasosas está limitada numericamente pelo número de poros de adsorção no carvão ativado.

A capacidade de adsorção do carvão utilizado foi avaliada em 3 ensaios com 6 coletores cada um – 3 com aporte inicial de vapor d'água e 3 sem aporte inicial.

Primeiramente, 9 coletores 607 foram colocados em ambiente com baixa concentração de ^{222}Rn e saturado de vapor d'água. Cada conjunto de 3 coletores foi retirado após 0,84 d, 1,83 d e 2,80 d de exposição e, simultaneamente, com outros 3 coletores 607 recém retirados da estufa a 72 ^{o}C, colocados para medir a taxa de exalação de ^{222}Rn em substrato de amostragem conforme apresentado na subseção 3.3.4 A amostragem em ambiente controlado.

Pressupõe-se que a perda da capacidade de adsorção devido à pré adsorção de vapor d'água resulte em diferença entre valores de taxas de exalação medidos pelos coletores 607 com e sem pré adsorção inicial de vapor d'água.

O ambiente saturado de vapor d'água foi um container de aço inox hermeticamente fechado à entrada de ^{222}Rn, contendo uma tela de aço no fundo utilizada para separar uma camada de papel absorvente saturado por água e a base dos coletores.

3.3.3 A comparação com o coletor de grande área

A normatização pela Agência Americana de Proteção Ambiental do coletor de grande área para amostragens de ^{222}Rn representa parâmetro qualitativo importante no desenvolvimento de outros coletores a carvão ativado. Decorrente da proposta deste trabalho sobre as características dimensionais do coletor ser diferente, foi realizado um experimento comparativo entre o coletor normatizado ou de grande área e o coletor 607.

O experimento consistiu na realização de amostragens simultâneas utilizando dois coletores 607 e dois de grande área em ambiente com taxa de exalação de ^{222}Rn homogênea, durante tempos de amostragens iguais a 0,72 dias, 1,11 dias, 1,97 dias, 3,00 dias, 3,96 dias e 4,79 dias.

Para a correta execução do experimento, todas as variáveis possíveis e consideradas interferentes na preparação do carvão, montagem dos coletores,

amostragem e preparação para contagem foram mantidas idênticas para os dois tipos de coletores.

Este experimento também permitiu avaliar a eficiência de coleta dos coletores em função do tempo de amostragem. Na verdade, esta variável está intimamente relacionada com a coadsorção de vapor d'água que, dependendo de sua intensidade, pode apresentar restrições quanto à disponibilidade de locais de adsorção no corpo de carvão de cada coletor limitando, assim, a eficiência de coleta de ^{222}Rn.

3.3.4 A amostragem em ambiente controlado

Depara-se agora com a necessidade de avaliar a eficiência de amostragem dos dois coletores em medir um valor padrão ou conhecido de taxa de exalação de ^{222}Rn. Neste intuito, este experimento consistiu na elaboração de um dispositivo que resultou em sua superfície um valor teórico de exalação, determinado a partir da teoria de difusão de ^{222}Rn em meios porosos.

O substrato utilizado como padrão de exalação de ^{222}Rn foi um minério chamado caldasito que possui alta concentração de ^{238}U, de ^{226}Ra (26611 ± 581 Bq kg^{-1}) e, conseqüentemente, de ^{222}Rn. Para atender os objetivos, o tamanho de partícula foi reduzido a partir de britagem, moagem e peneiramento a seco até atingir granulometria entre 1,168 mm e 0,589 mm e, posteriormente, a úmido, exaustivamente, na peneira mais fina.

Após a preparação descrita, o caldasito foi devidamente acondicionado em uma caixa plástica obtendo-se, então, uma superfície com taxas de exalação de ^{222}Rn homogênea, na qual foram avaliadas as eficiências relativas, a reprodutibilidade e a repetitividade dos coletores de ^{222}Rn em condições de laboratório.

Devido à necessidade de apresentação de parâmetros teóricos para determinação da taxa de exalação no padrão criado, este assunto será retomado na subseção 4.4 O padrão de exalação de ^{222}Rn.

3.4 A bacia de rejeitos radioativos e os procedimentos de amostragem

A bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas é constituída por quatro regiões distintas, a saber: 1 – espelho d'água; 2 - área alagada coberta por vegetação; 3 – área seca e 4 – barragem da bacia de rejeitos. A área seca é dividida em duas, uma ao norte e outra a oeste da área alagada. Esta última recebeu na empresa a denominação de asa da andorinha. Contudo, neste trabalho, ambas são chamadas asas da andorinha, diferenciadas apenas pelo seu posicionamento em relação ao espelho d'água, ou seja, norte e oeste. Na Figura 6, é mostrada uma foto aérea da bacia de rejeitos e, na Figura 7, é apresentado um mapa com as divisões das referidas áreas e alguns pontos de amostragens – as unidades utilizadas na digitalização do mapa e dos pontos estão em UTM (Universal Transverse Mercator) e o Datun geodésico utilizado foi o SAD 69 (South America Datun 1969).

A asa norte é mostrada na Figura 8 e apresenta peculiaridades quanto à distribuição de região alagada e seca. Esta última é cortada por um leito com pequeno fluxo de água com largura variando entre 2 m a 20 m, dependendo principalmente do volume d'água. A asa oeste é mostrada na Figura 9 e apresenta

Figura 8. Asa nort e ou região de disposição de rejeitos radioativos da UTM – Caldas localizada ao norte da barragem da bacia de rejeitos radioativos

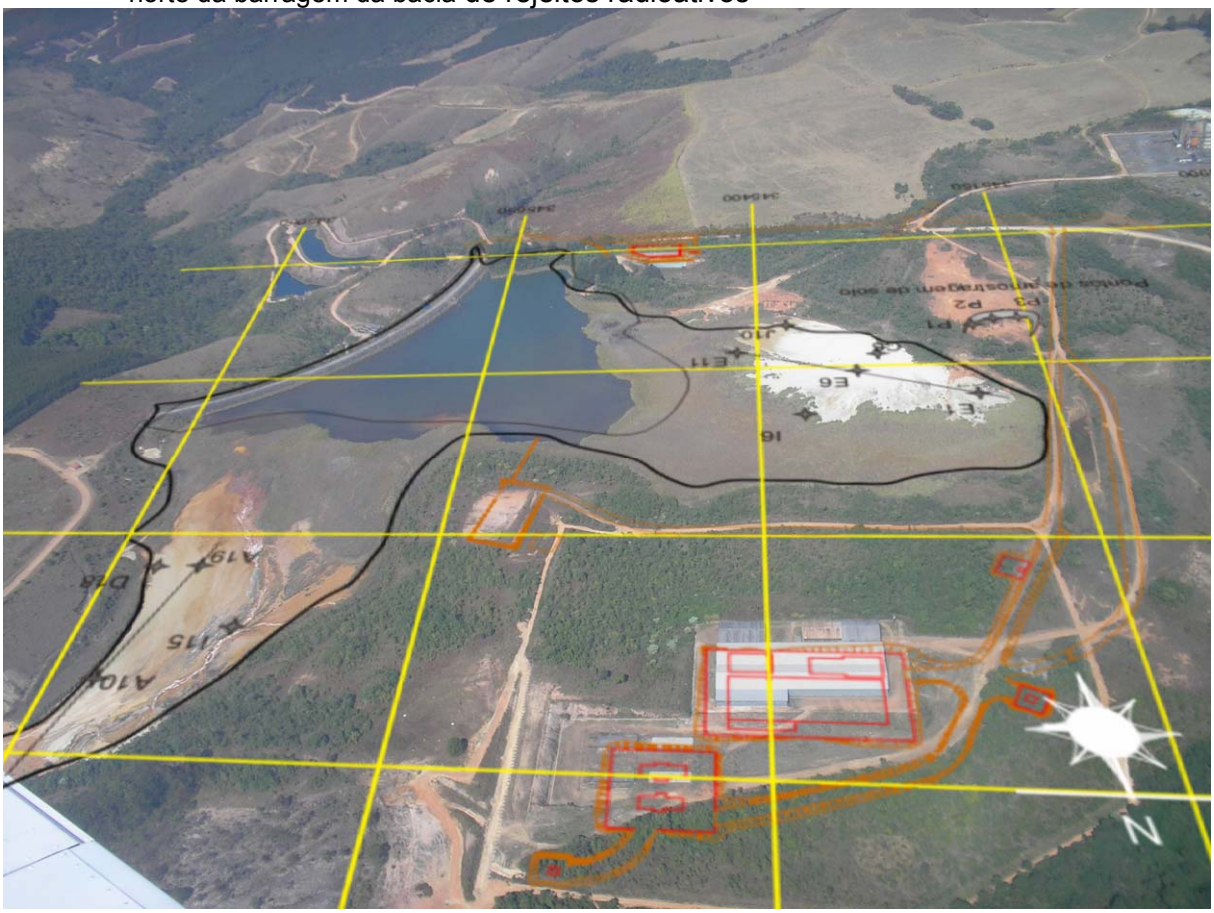

Figura 6. Vista aérea da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas com o mapa vetorizado da Figura 7 sobreposto (pontos da asa oeste e de amostragem de solo foram realocados)

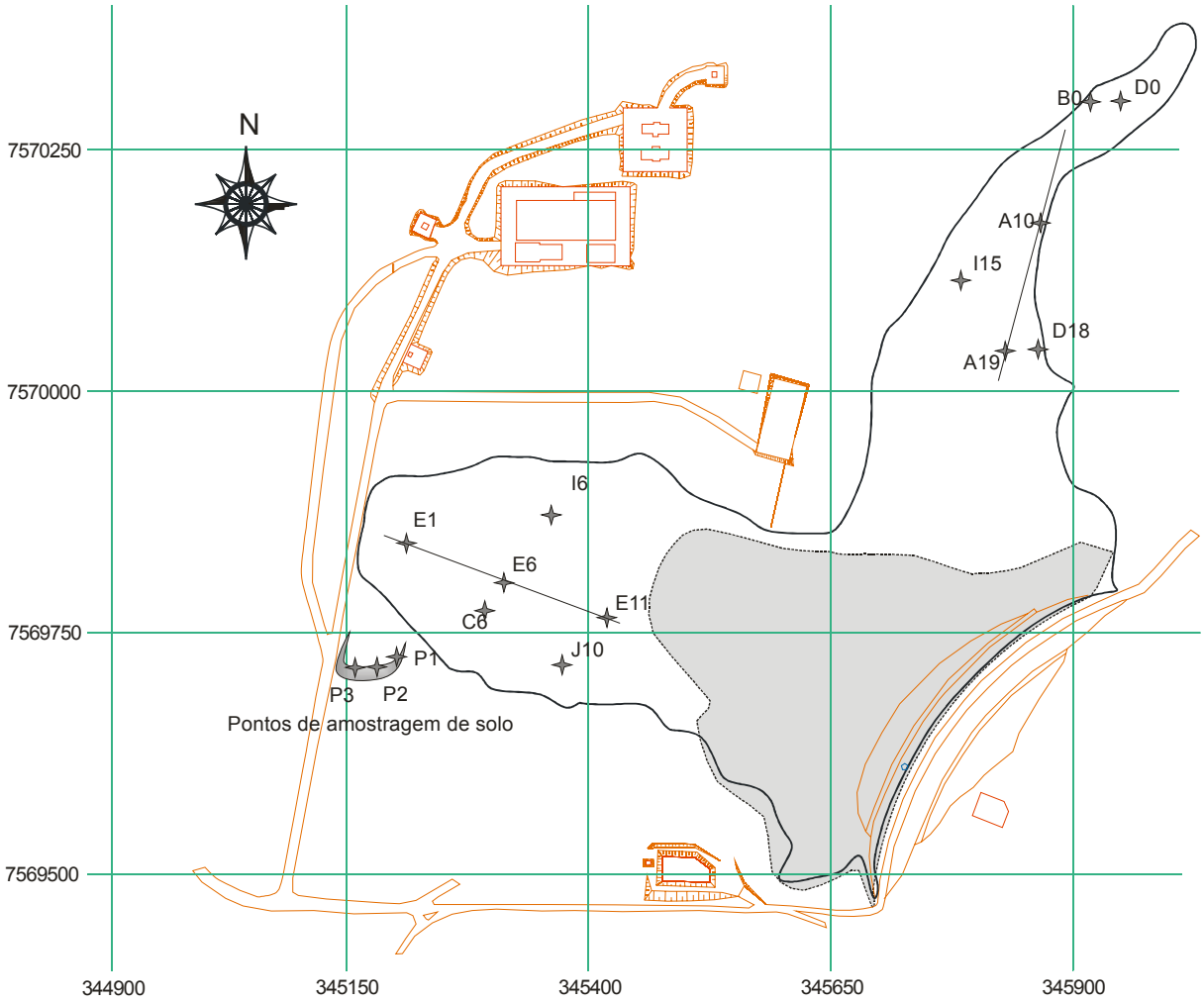

Figura 7. Mapa vetorizado da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas contendo alguns pontos de amostragem de taxa de exalação e os pontos de amostragem de solo georeferenciados

Figura 9. Asa oeste ou região de disposição de rejeitos radioativos da UTM – Caldas localizada a oeste da barragem da bacia de rejeitos radioativos

região seca bem delineada e região úmida caracterizada pela existência de vegetação típica de regiões alagadiças.

As áreas amostradas da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas foram medidas com GPS e foram iguais a 25462 m^2 ± 10,8% e 33386 m^2 ± 9,4% para a asa oeste e norte, respectivamente.

3.4.1 O limite de exalação e os procedimentos de amostragem

Decorrente da ausência de normas nacionais que regulamentem a exalação de ^{222}Rn e sua mensuração, foi utilizada a normatização americana através de dois documentos, um da "United States Nuclear Regulatory Commission" (USNRC, 2007) e o segundo da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1992). O limite norte-americano de exalação observado nestes documentos foi 0,74 Bq m^{-2} s^{-1}.

Devido à acentuada diferença entre as precipitações pluviométricas de inverno e verão da região na qual está inserida a UTM – Caldas, as amostragens foram realizadas coincidentemente com estas estações do ano – inverno e verão. Detalhes dos procedimentos de amostragem são tratados nas subseções 3.4.2 Delineamento experimental e 3.4.3 A amostragem de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos.

3.4.2 Delineamento experimental

O método 115 “Monitoring for radon-222 emissions” (USEPA 2008a), oficialmente adotado pela USEPA, normatiza a monitoração de exalação de ^{222}Rn para minas subterrâneas de urânio, bota-foras e bacias de rejeitos radioativos da indústria de urânio e pilhas de fosfogesso. Os bota-foras e as bacias de deposição de rejeitos são diferenciados em quatro tipos de regiões: 1-alagada; 2- saturada; 3-seca e 4- talude; destas, as três primeiras se aplicam à bacia da UTM – Caldas, sendo que apenas a 3 é passível de amostragem.

A região úmida é ocupada em quase toda sua totalidade por vegetação típica de locais alagadiços, não apresentando condições de monitoração, e está situada em um único corpo que envolve a região formada pelo espelho d’água e, juntamente com ele, separa as asas oeste e norte. O método 115 impõe um mínimo de 100 amostras para cada região passível de monitoração e, desta forma, serão necessárias no mínimo 400 coletas (200 para cada local divididas igualmente entre o verão e o inverno) para compor um resultado representativo da exalação de ^{222}Rn para a bacia de rejeitos da UTM – Caldas.

3.4.3 A amostragem de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos

O método 115 da USEPA impõe algumas restrições quanto à quantificação do fluxo de radônio em bacia de rejeitos radioativos, que foram seguidas durante as

amostragens de campo: 1 – as coletas de radônio devem ser iniciadas somente após 24 h de ausência de chuva; 2 – a amostragem deve ser cancelada na eventualidade de ocorrer chuva durante o período de coleta; 3 - não devem ser realizadas amostragens em temperaturas inferiores a 1,67 ^{o}C. Neste trabalho, houve alteração do tempo de ausência de chuva de 24 horas para 48 horas.

Na asa norte, foi estabelecida uma malha quadrada com 124 pontos antes do início do verão de 2007. No verão de 2008, o número de pontos observados e passíveis de monitoração subiu para 141, pois, houve um avanço da área descoberta e conseqüente aumento da área úmida da asa norte. Na asa oeste, foi estabelecida uma malha retangular com 119 pontos.

Os pontos de amostragens foram marcados com estacas de 1 m de comprimento codificadas com código do ponto e datas iniciais de amostragens. Os códigos dos pontos e esboço das malhas são mostrados na Figura 1 e Figura 2 do Apêndice A. Os resultados das determinações de taxa de exalação de ^{222}Rn em cada ponto de amostragem nas asas norte e oeste são apresentados no Apêndice B. Alguns pontos de amostragem da bacia, apresentados na Tabela 1, foram georeferenciados para efeito de futuro reposicionamento das malhas das Figuras 1 e 2 do Apêndice A.

3.5 O solo utilizado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn

A taxa de exalação de ^{222}Rn de superfícies com rejeitos industriais associados à família do ^{238}U pode ser atenuada utilizando-se de solos. Em face da

grande área de disposição do rejeito na bacia da UTM – Caldas e na eventualidade de se optar pela execução de uma cobertura com solo, deverá ser deslocado um volume considerável deste material, havendo, portanto, necessidade de avaliar o custo-benefício e, principalmente, a efetividade do material disponível. Há de se determinarem, portanto, as variáveis de entrada de modelos para estimar a qualidade de solos que possam ser utilizados como barreiras de exalação.

Tabela 1 – Pontos de amostragem georeferenciados em UTM (Datun SAD 69) na bacia de rejeitos radioativos da unidade de tratamento de minérios da INB - Caldas

Asa Norte				Asa Oeste			
Ponto	Latitude (UTM)	Longitude (UTM)	Incerteza (m)	Ponto	Latitude (UTM)	Longitude (UTM)	Incerteza (m)
A_{10}	0345865	7570175	12	C_6	0345293	7569773	30
A_{19}	0345831	7570042	10	E_1	0345212	7569843	22
B_0	0345919	7570300	7	E_6	0345313	7569802	22
D_0	0,345950	7570301	12	E_{11}	0345419	7569766	30
D_{18}	0345878	7570044	7	I_6	0345362	7569872	30
I_{15}	0345785	7570115	7	J_{10}	0345373	7569717	22

Visualizando o problema por este ângulo, a modelagem matemática oficial da USNRC, também referenciada pelo relatório técnico 333 da IAEA (IAEA, 1992), foi escolhida para avaliação da exalação de radônio utilizando solo das imediações da bacia de rejeitos radioativos da UTM - Caldas, como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn. Esta investigação será realizada em laboratório através da montagem de colunas – uma de rejeito e 3 de solo-rejeito com diferentes alturas de solo e quantidades iguais de rejeito – utilizado como fonte de ^{222}Rn e disposto por baixo das camadas de solo.

O solo escolhido para estudo foi retirado de um local situado a cerca de 100 m ao sul da asa oeste da bacia de rejeitos da UTM – Caldas. O fator que pesou nesta escolha foi a proximidade entre a fonte de solo e a bacia.

3.5.1 O modelo de transporte de ^{222}Rn

A URSNC estabeleceu a modelagem de solos utilizados em estudos de coberturas de rejeitos industriais para atenuação de exalação de ^{222}Rn (USRNC, 1989). Além disto, este modelo está de acordo com a USEPA, que limita a liberação de ^{222}Rn em 0,74 Bq m^{-2} s^{-1} por um período de 1000 anos.

O mesmo modelo é adotado pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1992), porém, alguns detalhes técnicos os diferenciam, por exemplo, o documento da URSNC regulamenta as condições de compactação de solos em experimentos, o que não acontece no documento da IAEA. Por outro lado, este documento desenvolve mais detalhadamente a equação de exalação de ^{222}Rn.

O modelo foi estabelecido para condição unidimensional de regime estacionário ou de equilíbrio dinâmico de difusão de um gás. Desta forma, transporte por advecção e outros fenômenos transientes são desconsiderados. A equação de difusão de ^{222}Rn em um volume infinitesimal deriva da equação de continuidade em um meio poroso e tem dois termos de perda, um por difusão e outro por decaimento, e um termo fonte ou de geração, o decaimento de ^{226}Ra, representados nesta seqüência na equação 13.

$$\nabla \cdot J + n\lambda C = R\rho E\lambda \tag{13}$$

onde:

J = fluxo de ^{222}Rn no meio poroso (Bq m^{-2} s^{-1})

$\nabla \cdot$ = perda de ^{222}Rn no volume considerado (Bq m^{-2} s^{-1})

n = porosidade total do material (adimensional)

λ = constante de decaimento do ^{222}Rn (2,06 10^{-6} s^{-1})

C = concentração de ^{222}Rn no espaço poroso (Bq m^{-3})

R = concentração de ^{226}Ra no material seco (Bq kg^{-1})

ρ = densidade do material (kg m^{-3})

E = coeficiente de emanação (adimensional)

Da lei de Fick da teoria de difusão resulta que o fluxo da concentração de ^{222}Rn no meio poroso é proporcional, porém de sentido contrário, ao gradiente da concentração, ou seja:

$$J(x) = -Dn\frac{dC}{dx} \tag{14}$$

onde:

D = coeficiente de difusão de ^{222}Rn no meio poroso (Bq m^{-2} s^{-1})

Substituindo a equação 14 na equação 13 fica-se com:

$$D\frac{d^2C}{dx^2} - +\lambda C + \frac{R\rho E\lambda}{n} = 0 \tag{15}$$

A solução geral da equação 15, assumindo coeficientes de difusão e emanação constantes é dada por:

$$C(x) = A\exp(bx) + B\exp(-bx) + Z \tag{16}$$

onde

$$b = \sqrt{\lambda / D} \tag{17}$$

$$Z = R\rho E\lambda / n \tag{18}$$

A e B são constantes de integração

Considerando que o fluxo na base do depósito de rejeito é igual a zero, a concentração é uma função contínua ao longo do perfil, o fluxo de um perfil qualquer é constante no tempo e a concentração na camada superficial é igual a um valor específico, então, a solução da equação 15, para um depósito de rejeito radioativo descoberto, será dada pela equação 19.

$$J(x) = R\rho E\sqrt{\lambda D}\tanh(x\sqrt{\frac{\lambda}{D}}) \tag{19}$$

onde:

J = fluxo de ^{222}Rn no meio poroso (Bq m^{-2} s^{-1})

R = concentração de ^{226}Ra no material seco (Bq kg^{-1})

ρ = densidade do material (kg m^{-3})

E = coeficiente de emanação (adimensional)

λ = constante de decaimento do ^{222}Rn (2,06 10^{-6} s^{-1})

D = coeficiente de difusão de ^{222}Rn no meio poroso (Bq m^{-2} s^{-1})

x = altura do perfil (m)

A equação 19 é válida para depósitos de rejeitos com perfil de altura conhecida e com ausência de cobertura. No caso de se adicionar uma cobertura de

espessura x_c, composta por um material homogêneo, o fluxo de ^{222}Rn na superfície da cobertura (J_c) pode ser representado pela equação 20.

$$J_c = J \exp(-x_c \sqrt{\lambda / D_c}) \tag{20}$$

onde:

x_c = espessura da camada de cobertura

D_c = coeficiente de difusão de ^{222}Rn no meio poroso de cobertura (Bq m^{-2} s^{-1})

Esta solução também pode ser utilizada para depósitos de rejeitos não homogêneos, desde que seja possível discretizar o perfil heterogêneo em perfis menores, homogêneos. Outra aplicação da equação 19 é a determinação de coeficientes de difusão de ^{222}Rn para depósitos de rejeitos, desde que seja possível a determinação de 2 valores de exalação para alturas diferentes de rejeitos. Experimentalmente, significa que coeficientes de difusão podem ser determinados em laboratório, desde que as condições de compactação e umidade sejam conhecidas ou possam ser reproduzidas em laboratório.

A solução exata da exalação de ^{222}Rn para depósitos de rejeitos com espessura x, cobertos com materiais atenuadores homogêneos de espessura x_c, com coeficientes de difusão constantes nestes perfis, é dada pela equação 21.

$$J_c(x) = \frac{2J(x)\exp(-x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})}{1+\sqrt{\frac{a}{a_c}}\tanh(x\sqrt{\frac{\lambda}{D}}) + (1-\sqrt{\frac{a}{a_c}}\tanh(x\sqrt{\frac{\lambda}{D}}))\exp(-2x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})} \quad (21)$$

onde:

$$a_i = n_i^2 D_i (1-(1-k)m_i)^2 \quad \text{ou} \quad a_i = \lambda D_i \quad (22)$$

i = índice dos perfis de rejeito ou cobertura

n = porosidade (adimensional)

k = coeficiente de distribuição do ^{222}Rn entre água e ar, aproximadamente 0,26 a 20 ^{o}C, (adimensional)

m = fração de umidade de saturação (adimensional)

O índice c indica constantes do meio de cobertura e a ausência de índice, constantes do meio poroso ou gerador de ^{222}Rn.

A fração de umidade de saturação USNRC (1989)e a porosidade calculada (LIBARDI, 2005) podem ser determinadas pelas equações 23 e 24, respectivamente.

$$m_i = \frac{\rho_i w_i}{n_i \rho_w} \quad (23)$$

onde:

ρ_i = densidade do rejeito ou cobertura (kg m^{-3})

w_i = água disponível (adimensional)

ρ_w = densidade da água (kg m^{-3})

$$n_i = 1 - \frac{\rho_i}{G_i \rho_w} \tag{24}$$

onde

G_i = densidade relativa do rejeito ou cobertura (adimensional)

ρ_{Si} = densidade de sólidos do rejeito ou solo (kg m^{-3})

A USNRC recomenda que a amostragem de solo para determinação da capacidade de campo (CC) seja realizada em profundidades situadas entre 1,20 m e 5,0 m da superfície e aceita que a água disponível do solo de cobertura seja determinada pela diferença entre a capacidade de campo e o ponto de murchamento permanente (PMP) (ASSIS, 2002).

A equação 21 pode ser simplificada desde que o argumento da tangente hiperbólica seja menor que 0,3 ou maior que 2. No primeiro caso, tem-se:

$$J_c(x) = \frac{2J(x)\exp(-x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})}{1 + x\sqrt{\frac{a\lambda}{a_c D}} + (1 - x\sqrt{\frac{a\lambda}{a_c D}}\exp(-2x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})} \tag{25}$$

No segundo caso, a tangente hiperbólica resultará em um valor unitário e a equação 21 reduz-se à equação 26.

$$J_c(x) = \frac{2J(x)\exp(-x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})}{1 + \sqrt{\frac{a}{a_c}} + (1 - \sqrt{\frac{a}{a_c}})\exp(-2x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})} \tag{26}$$

Note que a equação 26 ficará reduzida à equação 20, desde que os coeficientes de difusão sejam aproximadamente iguais. Assim, a versão simplificada da equação 21, ou seja, a equação 20, somente é válida se forem respeitadas as condições mencionadas anteriormente.

A realidade de campo nem sempre permite o alinhamento das condições de validade da equação 21 em relação aos parâmetros de solo da equação 22. Desta forma, a equação 27 permite ajustar a equação 21 em função de alguns parâmetros do rejeito e material de cobertura, para uma condição de campo em termos de ausência de dados sobre porosidades e umidades do rejeito e material de cobertura. Mesmo assim, deve-se considerar que a solução ideal é a exata, representada pela equação 21.

$$J_c(x) = \frac{2J(x)\exp(-x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})}{1+\sqrt{\frac{D}{D_c}}\tanh(x\sqrt{\frac{\lambda}{D}}) + (1-\sqrt{\frac{D}{D_c}}\tanh(x\sqrt{\frac{\lambda}{D}}))\exp(-2x_c\sqrt{\frac{\lambda}{D_c}})} \qquad (27)$$

3.5.2 A amostragem de solo

O local escolhido para amostragem de solo nas proximidades da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas foi utilizado pela empresa como fonte de material para aterros, o que facilitou a amostragem. Na área, foi observado um barranco de aproximadamente 3 m de altura, onde foram escolhidos 3 pontos de coleta. A Figura 10 apresenta uma seqüência de fotos com uma visão geral do local

que mostram a retirada de solo dos pontos de amostragem, a pré-homogeneização e o transporte do solo. Os pontos de amostragem foram georeferenciados por GPS em unidades de UTM utilizando o Datun SAD-69: P_1 = O345202 / 7569725, P_2 = O345183 / 7569715 e P_3 = O345159 / 7569714, com incertezas no momento de tomada de dados iguais a 20m.

Figura 10. Amostragem de solo utilizado para avaliação de capacidade de atenuação da taxa de exalação de ^{222}Rn nas colunas de solo-rejeito

As 3 porções de solo que compuseram a amostra foram retiradas com máquina carregadeira que, primeiramente, realizou decapagem vertical e, então, tomou quantidades aproximadamente iguais de solo de cada ponto. As porções obtidas compuseram um único monte que foi misturado pela máquina e, em seguida, colocado em um caminhão basculante para transporte até o local de preparação do solo e montagem do experimento.

3.5.3 A amostragem de rejeito

O material escolhido como fonte de ^{222}Rn para o experimento de colunas de solo-rejeito foi o rejeito da asa oeste da bacia de rejeitos. Duas particularidades foram determinantes para esta escolha: primeiro, é uma boa fonte de radônio e, segundo, é a própria fonte a ter a exalação de radônio atenuada.

A Figura 11 mostra uma seqüência de fotos realizadas durante a execução dos procedimentos de amostragem do rejeito da asa oeste.

A amostragem do rejeito foi realizada em 8 pontos diferentes utilizando carrinhos e pás para encherem quatro big-bags de 500 L que foram transportados até o Laboratório de Poços de Caldas (LAPOC) para armazenamento homogeneização, secagem à sombra, peneiramento e utilização. A distância entre pontos de amostragem foi de 20 m e foram tomados em formato de L (5x3).

Figura 11. Amostragem de rejeito usado como fonte de ^{222}Rn para avaliação do solo como elemento atenuador da taxa de exalação de ^{222}Rn nas colunas de solo-rejeito

3.5.4 Preparação do solo e rejeito para montagem das colunas

Desde o início da coleta de solo e rejeito, houve preocupação constante com a homogeneização. No caso do solo, foi iniciada pela máquina carregadeira que, antes de colocá-lo no caminhão, realizou homogeneização em pilha com retomada frontal. Este procedimento foi repetido na disposição do solo para secagem à sombra e, durante o peneiramento, o solo foi tomado em pontos distintos.

Figura 12. Peneira vibratória usada para obter solo e rejeito em granulometria inferior a 2 mm

No inverno de 2006 o solo foi espalhado sobre lona plástica e deixado nesta situação por dois meses para secagem à sombra. No final deste período foi peneirado em peneira de malha de 2 mm e devidamente embalado. Esta metodologia é denominada terra fina seca ao ar – TFSA (LIBARDI, 2005). Na Figura 12, observam-se o peneirador utilizado e dois conjuntos de sacos plásticos, o da esquerda com solo e o da direita com rejeito da UTM – Caldas, e, no canto inferior direito, parte do solo seco ainda por peneirar.

O rejeito tomado na bacia foi transportado em big-bags e a homogeneização foi realizada em betoneira, onde cada batelada era composta por 4 partes iguais de rejeito, tomadas cada uma de um big-bag. O material resultante foi amontoado e depois espalhado para secagem à sombra sobre uma lona de 5 m x 6 m em local amplo, cimentado e bem arejado por dois meses do inverno de 2006. Após secagem, o monte foi retomado e peneirado, também em peneira de malha de 2 mm e embalado.

Desta forma, foram obtidos o solo e o rejeito utilizados na montagem das colunas para estudo do solo como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas.

3.5.5 Procedimentos de montagem das colunas

Para avaliar o solo no estudo de cobertura, foram montadas 4 colunas de 0,75 m de diâmetro com quantidades iguais de rejeito no fundo – 306 kg. Das 4 colunas, uma foi deixada somente com rejeito e as demais receberam diferentes espessuras de camadas de solo, a saber, 0,20 m, 0,40 m e 0,60 m. A compactação do rejeito foi realizada a seco nos quatro tanques, antes de iniciar o enchimento com solo.

Antes do enchimento das colunas com solo, o rejeito foi umedecido e o procedimento de enchimento foi de acordo com as condições de montagem exigidas pela USEPA (USNRC, 2007). O órgão regulador recomenda no documento que a compactação de solo seja realizada a pelo menos 95 % da máxima densidade seca, determinada através do teste de densidade Proctor normal.

Neste intuito, foi realizado ensaio para determinação da umidade ótima de compactação do solo através da norma NBR 7182 – Solo - Ensaios de compactação (ABNT, 1986b). A amostra utilizada seguiu os procedimentos da norma NBR 6457 – Amostras de solo – Preparação para ensaios de compactação e ensaios de caracterização (ABNT, 1986a). Os procedimentos empregados no ensaio foram: energia de compactação normal com soquete pequeno sem reuso de material, sobre amostras preparadas com secagem prévia até a umidade higroscópica.

Após a determinação da umidade ótima de compactação, o solo teve sua umidade corrigida em bateladas empregando-se uma betoneira para homogeneização. A verificação da umidade foi realizada pelo método da frigideira

(ALMEIDA, 2005). Após ser obtido um valor próximo da umidade ótima de compactação, o solo foi transferido para a coluna e um soquete de madeira (área de base igual a 0,02 m^2 e massa de 2,5 kg) foi utilizado para compactar o solo em camadas de 0,1 m.

A compactação do solo nas colunas foi executada em camadas de 0,1 m e a verificação do grau de compactação foi realizada a cada camada de 0,20 m. Ele foi medido através da comparação entre a massa específica seca e a densidade do solo na coluna. Esta última foi determinada com um pequeno cilindro de massa e volume conhecidos que, ao ser inserido na superfície, retirava uma fração do solo compactado.

Na parte inferior de cada coluna, foi instalado um cano de PVC em formato de sifão que, cheio d'água, garantiu a estanqueidade das colunas quanto à perda de ^{222}Rn.

É importante mencionar que antes de se executar o procedimento de montagem descrito anteriormente, as colunas foram montadas a seco e tentou-se obter a compactação "ótima" através de pancadas com um martelo de borracha nas laterais de cada coluna. Primeiramente, a seco por pelo um mês e depois a úmido por pelo menos três meses. Em nenhum momento foi verificada uma atenuação representativa ou significativa da exalação de ^{222}Rn em qualquer uma das colunas nesta situação. Este procedimento foi análogo ao descrito por Libardi (1973), porém, em face das diferenças das dimensões das colunas utilizadas nos dois trabalhos, optou-se aqui, posteriormente, pela execução de procedimentos de compactação segundo a USNRC.

3.5.6 O experimento para avaliação da eficiência de atenuação do solo

O objetivo do experimento foi avaliar a eficiência de retenção de ^{222}Rn pelas camadas de solo adicionadas acima das massas de rejeito. Ele consistiu em uma amostragem simultânea de ^{222}Rn nas 4 colunas de solo-rejeito por 48 h. Na amostragem, foram utilizados 20 coletores 607 – 5 em cada coluna. Os resultados médios das taxas de exalação de ^{222}Rn das colunas com cobertura foram comparados com o valor obtido para a coluna sem cobertura.

3.5.7 Parâmetros de campo do modelo de transporte de ^{222}Rn

O planejamento correto de uma cobertura em uma bacia de rejeitos depende de parâmetros fundamentais e verdadeiros do rejeito e do material de cobertura para que o projeto atenda aos objetivos. Assim, dados relativos ao rejeito e à cobertura devem incluir constantes que possibilitem determinar o fluxo de radônio de um perfil de rejeito a partir da equação 19 ou o fluxo de radônio de 2 perfis, um de rejeito e outro de cobertura, a partir da equação 21, equação 25, equação 26 ou equação 27, dependendo das condições de contorno adotadas.

As determinações das constantes da equação 19 e equação 21 para a determinação dos valores de taxas de exalação no experimento das colunas de solo-rejeito foram realizadas das seguintes maneiras:

A concentração de atividade de ^{226}Ra (R) do rejeito e solo – A determinação de R foi dividida em duas etapas: a primeira correspondente à atividade de ^{214}Bi em equilíbrio com ^{226}Ra igual à fração não emanada de ^{222}Rn da amostra e a segunda igual à atividade de ^{222}Rn emanada da amostra.

As atividades das frações não emanadas de ^{222}Rn para o rejeito foram determinadas por espectrometria gama na geometria 607 através da contagem de eventos do pico de 609 keV do ^{214}Bi. As amostras foram secas em estufa a 105 ^{o}C antes das contagens e a equação 28 foi utilizada para calcular as atividades das amostras.

As determinações foram realizadas em dois conjuntos de amostras. O primeiro foi tomado em 6 pontos de amostragem na asa oeste, distantes 30 m entre si e em formato de cruz, em cada qual foram separadas 2 amostras, uma de superfície e outra de fundo à profundidade de 0,3 m. Os tempos de contagem destas amostras foram 600 s. O segundo conjunto foi montado a partir de 4 amostras não seladas tomadas após a homogeneização do rejeito, conforme descrito na subseção 3.5.4 Preparação do solo e rejeito para montagem das colunas. Os tempos de contagem destas amostras foram 3600 s.

$$A_{226_{Ra}} = A_{214_{Bi}} = \frac{C}{\varepsilon \gamma m t} \qquad (28)$$

onde

$A_{226_{Ra}}$ = concentração de atividade de ^{226}Ra na amostra (Bq kg^{-1})

$A_{214_{Bi}}$ = concentração de atividade de ^{214}Bi na amostra (Bq kg^{-1})

C = contagem líquida no pico do ^{214}Bi (eventos ou contagem no tempo t)

ε = eficiência de detecção (cps Bq^{-1})

γ = fração de emissão para o raio gama do ^{214}Bi (adimensional)

m = massa da amostra (kg)

t = tempo de contagem (s)

Para o solo, as determinações foram realizadas a partir de 3 amostras tomadas após homogeneização conforme descrito na subseção 3.5.4 Preparação do solo e rejeito para montagem das colunas. Os tempos de contagens destas amostras foram 36000 s.

As atividades correspondentes às frações emanadas de ^{222}Rn para o rejeito, e o solo foram determinadas de maneiras distintas, a saber:

Para o rejeito, as 12 amostras que integraram o primeiro conjunto para determinação da fração não emanada foram acondicionadas em garrafas de polietileno tereftalato (PET) de 185 mL e suas atividades do pico gama de 609 keV do ^{214}Bi foram medidas antes da selagem e novamente após selagem e obtenção de equilíbrio secular entre ^{226}Ra e ^{214}Bi. A diferença de atividades entre contagens de uma mesma amostra é igual à sua atividade de emanação que, quando comparada com a concentração de ^{226}Ra, resulta no coeficiente de emanação da amostra.

A selagem de amostras contendo ^{222}Rn em garrafas PET é uma sugestão da empresa Genitron Instruments no manual do AlphaGUARD, mais especificamente no AquaKIT – Accessory for radon in water measurement in combination with the radon monitor AlphaGUARD (GENITRON, 1997). Embora, a sugestão seja para armazenamento de amostras de água – geralmente amostras com baixa atividade de ^{222}Rn, ficou evidente que se a selagem funciona para água também o deveria fazer para amostras sólidas. Este fato foi comprovado colocando 5 garrafas cheias de rejeito e seladas dentro de um container de aço, cujo ambiente foi monitorado

pelo monitor de radônio AlphaGUARD por 1 mês e não foi observada atividade relevante em seu interior.

O coeficiente de emanação do rejeito – O coeficiente de emanação é igual à razão entre a atividade de ^{222}Rn que escapa do retículo cristalino de uma amostra e a atividade de ^{226}Ra da mesma amostra, podendo ser expresso como um percentil e é uma grandeza importante na modelagem da exalação. O coeficiente de emanação do rejeito foi determinado a partir dos resultados obtidos na determinação do parâmetro A concentração de atividade de ^{226}Ra (R) do rejeito e solo desta subseção.

Para o solo, a URSNC recomenda que, na ausência de valores medidos, seja utilizada uma estimativa de E igual a 35% tanto para rejeito como para cobertura. Já a IAEA (1992) recomenda que, nestas mesmas condições, este valor seja de 25%. Porém, como será mostrado na subseção 4.8 O solo estudado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn, o seu valor foi determinado com exatidão.

Densidades do rejeito e solo – A densidade do solo no campo foi determinada pelo método da escavação (CENA, 2008) empregando sacos plásticos para acondicionamento das amostras, nível de mão para nivelamento da superfície e limitação do nível de água e duas provetas graduadas – uma de 250,0 ± 2,5 mL e outra de 500,0 ± 10 mL. Os buracos resultantes das escavações tinham arestas suaves e antes da disposição de água receberam uma folha fina e maleável de plástico para sua impermeabilização.

As amostras foram destorroadas e colocadas para secar em forno à temperatura de 105 ^{o}C por 24 h antes de ter suas massas medidas. As 3 amostragens ocorreram próximas dos pontos de amostragem do solo descrito na subseção 3.5.2 A amostragem de solo. A densidade do solo de enchimento das

colunas foi determinada durante o ensaio de Proctor normal para compactação do solo no enchimento das colunas.

Para o solo utilizado nas colunas de solo-rejeito, a densidade foi determinada através da massa específica aparente seca no ensaio Proctor normal, Figura 20.

A densidade do rejeito foi determinada após o enchimento das colunas de rejeito e solo através da relação entre a massa adicionada e o volume medido com água até o nível de rejeito compactado em uma das colunas.

Alturas do perfil de rejeito – Elas foram medidas através de observação do perfil d'água em furos realizados com cavadeira nas duas asas. Porém, o valor utilizado nas colunas para o experimento de solo-rejeito foi de 0,50 m.

Coeficientes de difusão do rejeito e solo – Eles foram medidos de maneiras distintas, a saber:

O coeficiente de difusão do rejeito seco foi determinado através da equação 19 e para sua determinação foram construídas 8 colunas com alturas variando de 0,10 m a 2,10 m e diâmetro interno igual a 0,246 m. O rejeito utilizado na montagem foi preparado segundo os procedimentos descritos na subseção 3.5.4 Preparação do solo e rejeito para montagem das colunas. A montagem das colunas foi realizada em duas etapas, a primeira compreendeu o enchimento das colunas que, uma a uma, foram dispostas inclinadas, de tal forma que ao receberem uma porção de rejeito, na extremidade aberta, ela deslizava para a extremidade fechada. A segunda etapa foi iniciada pelo posicionamento vertical das colunas e enchimento total com início da compactação utilizando um martelo de borracha. O processo de enchimento com batidas de martelo nas laterais, em cada coluna, foi repetido até que a variação de

volume fosse nula. Em seguida, foi retirado o excesso de rejeito de cada coluna utilizando uma pequena concha de aço.

Após algumas semanas, foi realizada uma amostragem de exalação de ^{222}Rn nas colunas usando-se 2 coletores em cada uma com tempo de amostragem igual a 24 h. Os resultados de taxas de exalação de ^{222}Rn obtidos nas colunas de 0,5 m, 0,7 m, 0,9 m, 1,30 m, 1,70 m e 2,10 foram substituídos na equação 19. As constantes de entrada da equação 19 foram: concentração de atividade de ^{226}Ra, R = 7311 ± 122 $Bqkg^{-1}$, densidade do rejeito na coluna, ρ = 1545 ± 40 kg m^{-3}, coeficiente de emanação, E = 7,01 ± 0,09 % e constante de decaimento do ^{222}Rn, $\lambda = 2{,}098 \times 10^{-7}\ s^{-1}$.

O coeficiente de difusão do rejeito úmido utilizado nas colunas de solo-rejeito foi determinado através da equação 19, usando o valor médio de taxa de exalação de ^{222}Rn obtidos em cinco coletores 607, na amostragem para avaliação da atenuação da exalação nas colunas de solo-rejeito.

O coeficiente de difusão do solo foi determinado a partir dos resultados de taxa de exalação medidos nas colunas de solo-rejeito. Chauhan e Chakarvarti (2002) em um experimento similar utilizaram a equação 29 para meios porosos.

$$D = \lambda \left(\frac{x_2 - x_1}{\ln N_1 / N_2} \right)^2 \qquad (29)$$

onde:

D = coeficiente de difusão de ^{222}Rn ($m^2\ s^{-1}$)

x = altura de solo em cada uma das colunas (m)

N = concentração de ^{222}Rn na altura x (Bq)

A IAEA (1992) recomenda que na ausência de métodos diretos de determinação do coeficiente de difusão a equação 30 pode ser empiricamente usada para solos com compactação alta.

$$D = 3{,}5 * 10^{-6} \exp(-1{,}25m - 7m^5) \qquad (30)$$

onde:

D = coeficiente de difusão de ^{222}Rn ($m^2\ s^{-1}$)

m = fração de umidade de saturação (adimensional)

A densidade específica do rejeito e solo – As densidades específicas do rejeito e solo foram determinadas segundo os procedimentos da NBR 6508 Grãos de solo que passam na peneira de 4,8 mm – Determinação da massa específica (ABNT, 1984a). As massas das amostras e suas respectivas umidades foram preparadas segundo os procedimentos da NBR 6457 Amostras de solo – preparação para ensaios de compactação e ensaios de caracterização (ABNT, 1986a) e seu anexo – Determinação do teor de umidade de solos. Os ensaios foram realizados em 3 amostras de solo e 3 de rejeito, secas à sombra. Nas determinações foi empregada água deionizada e deareda e as massas das amostras de solo foram iguais a 0,05250 kg e das amostras de rejeito iguais a 0,05100 kg. As medidas de massa foram realizadas em balança com duas casas decimais, a temperatura ambiente foi 15,0 ^{o}C e a temperatura da água foi 14,5 ^{o}C.

A porosidade do rejeito e solo – As porosidades do rejeito e solo foram determinadas indiretamente, ou seja, foram calculadas. Os resultados foram obtidos a partir da equação 31 (LIBARDI, 2005) e os valores utilizados nas determinações

foram obtidos dos parâmetros densidades do rejeito e solo e a densidade específica do rejeito e solo determinados nesta subseção.

$$n = 1 - \frac{\rho}{\rho_S} \tag{31}$$

onde

n = porosidade calculada

ρ = densidade do solo ou rejeito

ρ_S = densidade de sólidos ou densidade específica

A capacidade de campo – Para as determinações, foram realizadas 3 amostragens de solo, todas tomadas a profundidades maiores que 1,20 m e próximas dos pontos de amostragem de solo conforme a subseção 3.5.2 A amostragem de solo. Elas foram realizadas com trado mecânico e as amostras acondicionadas em sacos plásticos e secas em estufa a 105°C até massa constante. A capacidade de campo foi determinada dividindo-se a massa de água da amostra pela massa da amostra seca. As massas foram medidas em balança de duas casas decimais.

A granulometria – Embora, não seja um dado necessário para o modelo utilizado neste trabalho, ela foi determinada para o solo de montagem das colunas. Esta decisão fundamenta-se no fato que a classe textural de solos conduz à sua diferenciação predominante – arenosos, siltosos e argilosos, que pode permitir correlacionar propriedades importantes do solo, tais como drenagem, porosidade, resistência à erosão e susceptibilidade à compactação (REINERT; REICHERT, 2006), além de outros fatores relacionados indiretamente com o coeficiente de

difusão e fator de emanação, por exemplo, a capacidade de campo (CC) e o ponto de murchamento permanente (PMP).

A granulometria por peneiramento fino e grosso foi realizada em 3 amostras de solo, tomadas nos mesmos locais onde foram retirados os solos utilizados nas montagens das colunas de solo-rejeito. Os ensaios seguiram os procedimentos da norma NBR 7181 Solo – Análise granulométrica, (ABNT, 1981b), à qual foi acrescentada peneira de 0,038 mm, e a amostragem seguiu os procedimentos da NBR 6457 – Amostras de solo – Preparação para ensaios de compactação e ensaios de caracterização (ABNT, 1986a).

3.6 O padrão de exalação

Para validar a metodologia de amostragem utilizando o coletor 607 foi criado o padrão de trabalho conforme descrito na subseção 3.3.4 A amostragem em ambiente controlado. O minério de caldasito tinha granulometria entre 1,168 mm e 0,589 mm, massa igual a 67,2 ± 0,15 kg e, na caixa, área total de exalação igual a 0,2968 ± 0,0033 m^2 e altura igual a 0,113 ± 0,002 m.

Como foi apresentado na subseção 3.5.1 O modelo de transporte de ^{222}Rn, a equação 19 pode ser utilizada para medida da taxa de exalação de radônio no padrão de trabalho.

$$J(x) = R\rho E\sqrt{\lambda D}\tanh(x\sqrt{\frac{\lambda}{D}})$$

A concentração de atividade de ^{226}Ra (R) no caldasito é igual à soma de duas frações de atividade de seus produtos de decaimento, uma retida e outra emanada. A primeira corresponde à atividade de ^{214}Bi resultante do decaimento de ^{222}Rn que ficou preso no retículo cristalino da matriz (R_r) e a segunda é igual à atividade de ^{222}Rn que emanou da amostra (R_e), o que pode ser representado matematicamente pela equação 32.

$$R = R_r + R_e \tag{32}$$

Para determinação da atividade da fração retida foram montadas 3 amostras de caldasito na geometria 607, o material foi seco em estufa por 24 h à temperatura de 72 ^{o}C. Cada amostra foi submetida a 3 contagens gama em detector 3x3 de NaI através do pico de 609 keV do ^{214}Bi por tempo de 3600 s.

Para determinação da atividade de ^{222}Rn emanado, foram tomadas duas amostras de 0,02500 kg, uma de 0,0500 kg e uma de 0,100 kg de caldasito e seladas em recipientes de contenção: 3 reatores de vidro e 1 container de aço inox. A atividade de ^{222}Rn foi medida após a obtenção de equilíbrio secular nas amostras utilizando detector de ^{222}Rn marca Genitron, modelo Alpha-Guard. Este equipamento mede a atividade de ^{222}Rn no ar que, neste caso, é realizado em circuito fechado, recirculando os gases do recipiente que contém a amostra e do detector ativo do Alpha-Guard. O Alpha-Guard foi limpo com ar utilizando filtro de carvão ativado entre uma determinação e outra, e uma nova contagem foi iniciada somente após observação de condição normal da contagem de fundo.

Os resultados médios das atividades de ^{222}Rn nas quatro amostras foram usados na equação 33 para determinação da atividade de ^{226}Ra (R_e) correspondente à fração de ^{222}Rn emanada da amostra.

$$R_e = \frac{A_{222Rn}(V - v)}{m} \tag{33}$$

onde:

R_e = concentração de atividade de ^{222}Rn emanada da amostra (Bq kg^{-1})

A_{222Rn} = concentração de atividade de ^{222}Rn emanada do caldasito ou rejeito industrial (Bq m^{-3})

V = volume que encerra a amostra durante a determinação (m^3)

v = volume da amostra (m^3)

m = massa de amostra (kg)

Após as determinações das frações descritas anteriormente, os resultados foram usados para determinar o coeficiente de emanação dado pela equação 34.

$$E = 100 \cdot \frac{R_e}{A_{226Ra}} \tag{34}$$

onde:

E = coeficiente de emanação de ^{222}Rn no caldasito ou rejeito industrial (%)

A_{226Ra} = concentração de atividade de ^{226}Ra na amostra (Bq kg^{-1})

Para a determinação da densidade do caldasito, foram utilizados os valores de massa, altura e área superficial da caixa apresentados no primeiro parágrafo desta subseção, obtendo-se o valor 2001 ± 23 kg m^{-3}.

O coeficiente de difusão foi medido empregando duas massas iguais de caldasito colocadas em duas colunas de PVC de 0,25 m de diâmetro. Devido à dependência do coeficiente de difusão com a granulometria, foi preparado um volume de areia seguindo os procedimentos de preparação granulométrica do caldasito. Após secagem, a areia foi depositada em uma das colunas com altura de 0,42 m acima da superfície de caldasito. Alguns dias depois, foram colocados três coletores 607 em cada coluna por 24 h e os valores médios de exalação de ^{222}Rn obtidos foram: $N_1 = 1,12 \pm 0,15$ Bq m^{-2} s^{-1} e $N_2 = 0,94 \pm 0,10$ Bq m^{-2} s^{-1}, considerando $x_1 = 0$ m e $x_2 = 0,420$ m que substituídos na equação 29 resultaram em $D_c = 1,23\ 10^{-5}$ m^2 s^{-1}.

Retornando à equação 19, observa-se que se o argumento da tangente hiperbólica for menor que 0,3 ($D > 2,94\ 10^{-7}$ m^2s^{-1}) então a exalação pode ser expressa pela equação 35.

$$J(x) = R\rho Ex\lambda \tag{35}$$

Esta situação, esperada para meios com granulometria alta, ausência de umidade e espessura da camada do rejeito pequena, é condição necessária para a elaboração de um padrão de exalação de ^{222}Rn. Assim, a determinação do coeficiente de difusão para o caldasito justifica-se apenas para avaliação do argumento da tangente hiperbólica – $4,64\ 10^{-2}$ com $x = 0,113 \pm 0,002$ m e $D = 1,23\ 10^{-5}$ m^2 s^{-1}.

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 A coadsorção de ^{222}Rn e vapor d'água

O experimento mencionado na subseção 3.3.2 A coadsorção de vapor d'água tem seus resultados apresentados na Tabela 2 e Figura 13. A Tabela 2 apresenta os valores de massas de vapor d'água inicial e final de cada coletor e os respectivos resultados de amostragens para medida de exalação de ^{222}Rn na caixa contendo caldasito na granulometria entre 1,168 mm e 0,589 mm.

Tabela 2 – Resultados de medida de taxa de exalação em 3 ensaios com 6 coletores 607 em cada um, sendo 3 com pré aporte inicial de vapor d'água e 3 sem aporte

tempo de amostragem	t_0 = 0,84 d t_f = 1,83 d (Experimento A)			t_0 = 1,83 d t_f = 2,80 d (Experimento B)			t_0 = 2,80 d t_f = 3,84 d (Experimento C)		
coletores	1	2	3	1	2	3	1	2	3
m_0 de vapor d'água	3,90	3,95	3,9	6,75	6,55	6,45	8,80	9,00	9,00
m_f	4,60	4,60	4,55	7,10	6,80	6,85	9,15	9,30	9,30
J ($Bqm^{-2}s^{-1}$)	0,55 ± 0,05	0,54 ± 0,05	0,53 ± 0,05	0,50 ± 0,06	0,52 ± 0,06	0,52 ± 0,05	0,49 ± 0,05	0,46 ± 0,06	0,50 ± 0,06
coletores	4	5	6	4	5	6	4	5	6
m_0	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
m_f	1,55	1,60	1,65	1,60	1,55	1,60			
J ($Bqm^{-2}s^{-1}$)	0,56 ± 0,05	0,55 ± 0,05	0,57 ± 0,05	0,57 ± 0,05	0,53 ± 0,05	0,55 ± 0,05	0,53 ± 0,05	0,55 ± 0,05	0,56 ± 0,05

A Tabela 3 traz os valores médios dos aportes de vapor d'água e das taxas de exalação. Considerando como valor verdadeiro os valores obtidos a partir dos 3 conjuntos de 3 coletores sem pré-adsorção e comparando-o com o respectivo valor

médio daquele com pré-adsorção, pode-se afirmar que a adsorção de ^{222}Rn é prejudicada pela pré-adsorção de vapor d'água.

Tabela 3 – Massas médias de vapor d'água inicial e final nos coletores 607 e taxas de exalação médias de ^{222}Rn nos 3 ensaios de coadsorção

experimento	valores médios para os coletores 607 com aporte inicial de vapor d'água			valores médios para os coletores 607 sem aporte inicial de vapor d'água (m_0 = 0 g)		
	m_0 H_2O (g)	m_f H_2O (g)	taxa de exalação J (Bq m^{-2} s^{-1})	m_f H_2O (g)	taxa de exalação J (Bq m^{-2} s^{-1})	diferença (%)
A	3,93	4,58	0,54 ± 0,05	1,92	0,56 ± 0,05	- 3,4
B	6,58	6,92	0,51 ± 0,06	1,58	0,55 ± 0,05	- 7,3
C	8,93	9,28	0,47 ± 0,06	1,78	0,55 ± 0,05	- 14,0

Este fato somente foi observado claramente para valor de aporte inicial médio de vapor d'água maior que 8,93 g – experimento C. Porém, a coadsorção de vapor d'água é um fenômeno simultâneo e, em condições de campo, esperam-se valores percentuais de interferência (diferença %) menores que aqueles observados neste experimento. A Figura 13 mostra os valores de massa de vapor d'água nos coletores 607 desde o momento inicial de colocação dos coletores no ambiente saturado com vapor d'água, até o fim da amostragem. As massas dos 9 coletores foram medidas nos tempos t_0 = 0 d, t_1 = 0,05 d, t_2 = 0,84 d, t_3 = 1,83 d, t_4 = 2,80 d e t_5 = 3,84 d, onde t_0 é o momento de entrada dos 9 coletores no recipiente saturado de vapor d'água.

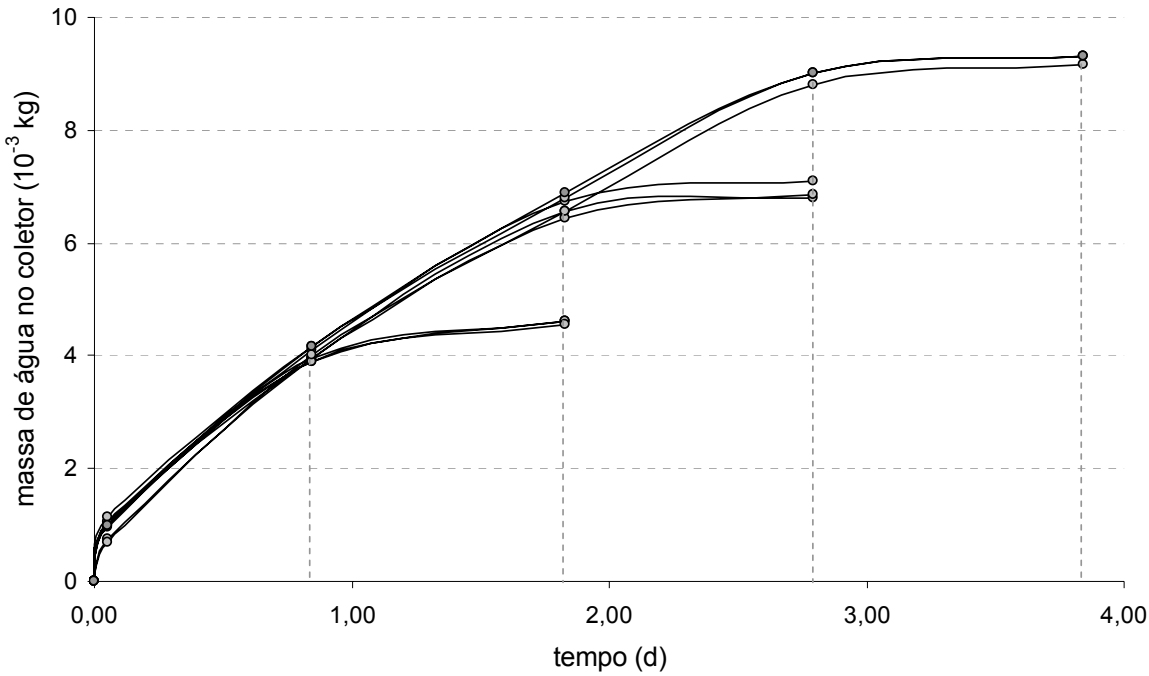

Figura 13. Massas de vapor d'água nos coletores 607 usados para avaliar a coadsorção de vapor d'água e ^{222}Rn em ambiente controlado

Em uma situação similar, foi realizado um experimento com 6 coletores colocados para amostrar simultaneamente por 0,97 dias. Dos 6 coletores, 3 foram colocados anteriormente em ambiente saturado apenas em vapor d'água por 24 horas e os outros 3 em estufa a 72 ^{o}C. Desta forma, houve uma pré-adsorção de vapor d'água e os resultados de exalação são apresentados na Tabela 4. Este experimento mostra que amostragens de 1 dia, utilizando o coletor 607, com aporte de massa de vapor d'água inferior a 5 g não interferem no resultado de taxa de exalação de ^{222}Rn.

Embora os experimentos anteriores tenham indicado uma diferença pequena entre os resultados de taxa de exalação, claramente decorrente do aporte inicial de vapor d'água, pode-se concluir que, para amostragens com aporte inferior a 0,0070 g de vapor d'água, a coadsorção tem influência desprezível na quantificação

da exalação de ^{222}Rn utilizando carvão ativado segundo a geometria e condições de amostragem do coletor 607.

Tabela 4 – Massas de água inicial e final nos coletores 607 e taxas de exalação de ^{222}Rn em ensaio de coadsorção com e sem pré aporte inicial de vapor d'água

Amostra	m_{H2O} inicial (g)	Δm_{H2O} amostragem (g)	Δm_{H2O} (g)	J(607) (Bq m^{-2} s^{-1})
1	3,90	0,7	4,60	0,55 ± 0,05
2	3,95	0,65	4,60	0,54 ± 0,05
3	3,90	0,65	4,55	0,53 ± 0,05
4	0,50	1,55	2,05	0,56 ± 0,05
5	0,45	1,60	2,05	0,55 ± 0,05
6	0,35	1,65	2,00	0,59 ± 0,05

Assim sendo, pode-se inferir dos resultados anteriores uma qualidade importante do coletor 607, ou seja, a influência da coadsorção de vapor d'água para períodos de até 4 dias pode ser desprezada. Porém, deve-se zelar para que o aporte de vapor d'água, durante uma amostragem, fique dentro dos valores mencionados.

4.2 A distribuição de ^{222}Rn no coletor 607

Como foi mencionado na subseção 3.3.1 A distribuição de ^{222}Rn no coletor, a distribuição axial de ^{222}Rn 607 pode ser não uniforme. As Tabelas 5 e 6 apresentam os resultados de atividade de ^{222}Rn e a massa de vapor d'água acumuladas em cada camada, respectivamente.

Para quantificar a atividade de ^{222}Rn em cada camada de carvão foi utilizada a equação 36.

$$A = \frac{C\lambda}{\varepsilon\gamma e^{-\lambda \cdot t_e}(1 - e^{-\lambda \cdot t_c})} \tag{36}$$

onde

A = atividade de ^{222}Rn (Bq)

C = contagem líquida no pico do ^{214}Bi (cps)

λ = constante de decaimento do ^{222}Rn ($2{,}098 \times 10^{-7}$ s^{-1})

ε = eficiência de detecção para o pico do ^{214}Bi (cps Bq^{-1})

t_e = tempo de espera entre fim da amostragem e início de contagem (s)

t_c = tempo de contagem (s)

A Tabela 5 mostra que as atividades de ^{222}Rn nas camadas mais próximas à superfície de amostragem são maiores independentemente do tempo de amostragem. Porém, a partir de dois dias de exposição, observa-se aumento gradativo na adsorção nas camadas mais distantes da superfície de exalação.

A Tabela 6 mostra o comportamento do coletor com relação à adsorção de vapor d'água, indicando início de saturação de locais de adsorção nas camadas mais próximas da superfície de exalação.

Tabela 5 – Atividade de ^{222}Rn (Bq) adsorvido nas camadas discretizadas dos coletores A e B e tempos de amostragens

tempo de amostragem	1,13 d	1,95 d	2,94 d	3,92 d
camadas	Atividade de ^{222}Rn (Bq)			
A_1	253±13		366±20	538±22
A_2	111±10	249±18	289±18	381±19
A_3	40±8	101±12	196±13	263±14
A_4	7±5	25±8	112±15	142±15
A_5	0±6	12±6	93±13	105±13
B_1	271±14	371±24	389±19	530±24
B_2	103±9	193±19	288±17	411±18
B_3	19±8	93±16	173±15	245±17
B_4	4±5	35±15	111±16	148±16
B_5	1±7	11±6	54±11	70±13

As camadas superiores não apresentam atividade relevante para tempos de amostragem inferiores a 2 dias, indicando ótima presença de locais de adsorção. Em face destes resultados, optou-se por tempo de amostragem de 1 dia em experimentos utilizando o coletor 607, considerando ainda nesta decisão que as condições de campo podem interferir nas propriedades de adsorção, reduzindo-as. Além disto, também foram consideradas as condições ambientais necessárias para uma amostragem e o número elevado de coletas exigido pelo delineamento experimental.

Outro detalhe importante que pode ser extraído da Tabela 5 é a necessidade de homogeneização do carvão ativado do coletor antes da contagem, pois o padrão utilizado tem distribuição homogênea de ^{226}Ra e, conseqüentemente, de ^{222}Rn, o que evidentemente não acontece com o coletor ao final de uma amostragem.

Tabela 6 – Massa de água adsorvida nas camadas dos coletores A e B e tempos de amostragens

Camada do coletor	Massa de água (g) na camada ao final da amostragem e tempo de amostragem			
	1,13 d	1,95 d	2,94 d	3,92 d
A01	0,50	1,00	1,10	1,10
A02	0,35	0,35	0,5	0,45
A03	0,30	0,20	0,35	0,35
A04	0,20	0,20	0,20	0,30
A05	0,05	0,15	0,20	0,30
B01	0,55	0,75	1,20	1,15
B02	0,45	0,55	0,50	0,70
B03	0,30	0,20	0,30	0,40
B04	0,10	0,20	0,20	0,40
B05	0,10	0,15	0,30	0,30

No coletor (US Army M11 gas canister) descrito por Countess (1976) o autor realiza a homogeneização do carvão após amostragem, mencionando que este fato poderia levar à perda de ^{222}Rn. A razão é simples, pois, para que o carvão seja homogeneizado, tem-se que destruir o lacre do dispositivo que encerra o carvão e, consequentemente, ele não poderia ser reutilizado na geometria original.

4.3 A comparação entre os coletores em amostragens realizadas em ambiente controlado

Como foi mencionado na subseção 3.3.3 A comparação com o coletor de grande área, foram realizadas 6 amostragens utilizando o caldasito na granulometria

situada entre 1,168 mm e 0,589 mm, conforme descrito na subseção 3.3.4 A amostragem em ambiente controlado.

Os resultados medidos de exalação de ^{222}Rn das amostragens são apresentados na Tabela 7 e o aporte de vapor d'água para as correspondentes amostragens são apresentados na Tabela 8. As atividades nos coletores de grande área e 607 foram determinadas utilizando-se da geometria 607, equação 11, e as taxas de exalação foram determinadas utilizando-se da equação 12. No caso do coletor de grande área houve ainda uma correção de atividade decorrente da massa de contagem ser menor que a de amostragem.

Tabela 7 – Resultados de taxa de exalação de ^{222}Rn em coletores 607 e de grande área em experimentos com tempos diferentes de amostragem realizados em ambiente controlado

experimento (tempo de amostragem) (d)	taxas de exalação (Bq m^{-2} s^{-1})			
	coletor 607		coletor de grande área	
	1	2	1	2
1 (0,72)	0,58 ± 0,06	0,57 ± 0,06	0,53 ± 0,06	0,52 ± 0,06
2 (1,11)	0,56 ± 0,06	0,55 ± 0,06	0,46 ± 0,05	0,52 ± 0,05
3 (1,97)	0,52 ± 0,06	0,53 ± 0,06	0,45 ± 0,14	0,44 ± 0,13
4 (3,00)	0,48 ± 0,05	0,49 ± 0,05	0,40 ± 0,14	0,39 ± 0,14
5 (3,96)	0,54 ± 0,06	0,53 ± 0,06	0,36 ± 0,18	0,36 ± 0,18
6 (4,79)	0,50 ± 0,05	0,48 ±0,05	0,28 ± 0,16	0,26 ± 0,15

Os resultados das Tabelas 7 e da Tabela 8 quando comparados para os dois coletores evidenciam que o coletor 607 apresenta maior precisão e menor correlação entre tempo de amostragem e aporte de vapor d'água. Os mesmos resultados também mostram a fragilidade do coletor de grande área para amostragens com aporte de vapor d'água maior que 4,45 g.

Tabela 8 – Aporte de vapor d'água nos coletores 607 e de grande área em experimentos com tempos diferentes de amostragem de ^{222}Rn realizados em ambiente controlado

experimento	607		grande área	
(tempo de amostragem) (d)	m_{1a} H_2O (g)	m_{1b} H_2O (g)	m_{1a} H_2O (g)	m_{1b} H_2O (g)
1 (0,72)	1,65	1,35	4,80	4,45
2 (1,11)	1,50	1,50	4,30	4,15
3 (1,97)	2,30	2,30	7,10	6,90
4 (3,00)	2,80	2,75	8,50	8,25
5 (3,96)	4,35	4,50	12,15	12,30
6 (4,78)	6,10	5,85	14,15	14,35

4.4 O padrão de exalação de ^{222}Rn

Como foi apresentado na subseção 3.6 O padrão de exalação, a equação 19 foi utilizada para determinação da taxa de exalação de ^{222}Rn na caixa contendo caldasito.

O coeficiente de emanação foi determinado a partir dos resultados das atividades de ^{222}Rn nas 4 amostras de caldasito lacradas nos reatores e recipiente. Na determinação de concentração de atividade de ^{222}Rn emanada, foi utilizada a equação 33 e, a partir da equação 34, foram determinados os coeficientes de emanação para cada amostra. Na Tabela 9, são mostrados os volumes dos recipientes, concentrações de atividade determinadas para cada amostra, além, dos respectivos coeficientes de emanação para cada uma delas. O valor médio obtido foi 4,2 ± 0,1 %.

Tabela 9 – Massas, volumes dos recipientes de contenção, concentrações de atividade e coeficientes de emanação nas 4 amostras de caldasito usadas para determinação do coeficiente de emanação

	Reator 1	Reator 2	Reator 3	Container
m (kg)	0,025	0,05	0,025	0,1
V (L)	0,001863	0,001843	0,001863	0,051265
R_e (Bq m^{-3})	15190,4	29738,67	14860,8	2116
A (^{222}Rn) (Bq kg^{-1})	1131,989	1096,167	1107,427	1084,767
E (%)	4,12	4,25	4,16	4,08

A concentração de atividade de ^{226}Ra no caldasito (R) resultante das 9 determinações das 3 amostras foi igual a 26611 ± 581 Bq kg^{-1}. As demais variáveis foram: densidade do caldasito ρ = 2001 ± 22 kgm^3; constante de decaimento do ^{222}Rn λ = 2,06 10^{-6} s^{-1} e altura do perfil x = 0,113 ± 0,002 m. O coeficiente de emanação foi determinado a partir da substituição dos dados da Tabela 9 na equação 32. O valor calculado resultou em uma taxa de exalação no caldasito igual a 0,52 ± 0,04 Bq m^{-2} s^{-1}.

Comparando-se este valor com os resultados médios obtidos nas amostragens realizadas com os coletores 607 e de grande área, mostrados nas Tabelas 2, 3, 4 e 7, pode-se concluir que ambos os coletores apresentaram resultados válidos. Porém, focando a atenção nos resultados da Tabela 7, verifica-se que o coletor de grande área apresentou boas propriedades de coleta de ^{222}Rn apenas para tempos inferiores a 0,69 dias. O mesmo fato pode ser verificado para o coletor 607, porém, o período de amostragem se estende a quase 5 dias.

O aspecto apresentado anteriormente conferiu ao coletor 607 uma característica muito importante, ou seja, capacidade de amostragem em períodos de 24 horas. Sua importância está no fato que, embora, tenha-se admitido para efeitos de amostragem que a exalação é constante, é notório que esta grandeza varia em

função das condições de temperatura, pressão e deslocamento de ar, grandezas dependentes do posicionamento do sol e, portanto, cíclicas em períodos de 24 horas.

4.5 O padrão de trabalho de exalação de ^{222}Rn

O valor médio de taxa exalação de ^{222}Rn obtido com o coletor 607 a partir dos resultados de taxas de exalação apresentados na Tabela 2, 4 e 7, excetuando-se os 3 valores com aporte inicial de vapor d'água maior que 7,00 g da Tabela 2, obtém-se 0,54± 0,03 Bq m^{-2} s^{-1} Comparando-o com o valor teórico apresentado na subseção 4.4 O padrão de exalação de ^{222}Rn, –- 0,52 ± 0,04 Bq m^{-2} s^{-1}, pode-se concluir que o coletor 607 é um bom instrumento de coleta para a quantificação da taxa de exalação de ^{222}Rn. Logicamente que esta conclusão deve ser condicionada à observação dos procedimentos de preparação do carvão, montagem dos coletores, amostragens e preparação das amostras para contagem.

Os pontos mais relevantes com relação às amostragens de ^{222}Rn no padrão de exalação foram as validações do coletor 607 e do padrão de exalação de caldasito.

O USDE (1978) realizou um experimento em colunas utilizando areia, areia fina e bentonita, porém, o órgão informa que houve dificuldades para quantificação da taxa de exalação de ^{222}Rn na superfície material-atmosfera, atribuindo essas dificuldades à incerteza associada à utilização da técnica de carvão ativado nas amostragens.

4.6 A taxa de exalação de ^{222}Rn na bacia de rejeitos radioativos

As amostragens na bacia de rejeitos radioativos da UTM - Caldas seguiram os procedimentos indicados na subseção 3.4 A bacia de rejeitos radioativos e os procedimentos de amostragem.

As amostragens de inverno da asa oeste foram realizadas entre os dias 24/07/2006 e 23/08/2006 e os resultados das taxas de exalação em cada ponto de amostragem são apresentados na Tabela 3 do Apêndice B. A média da taxa de exalação das 119 amostras tomadas foi 1,30 ± 1,24 Bq m^2 s^{-1} e a Figura 14 traz a distribuição dos valores de taxa de exalação.

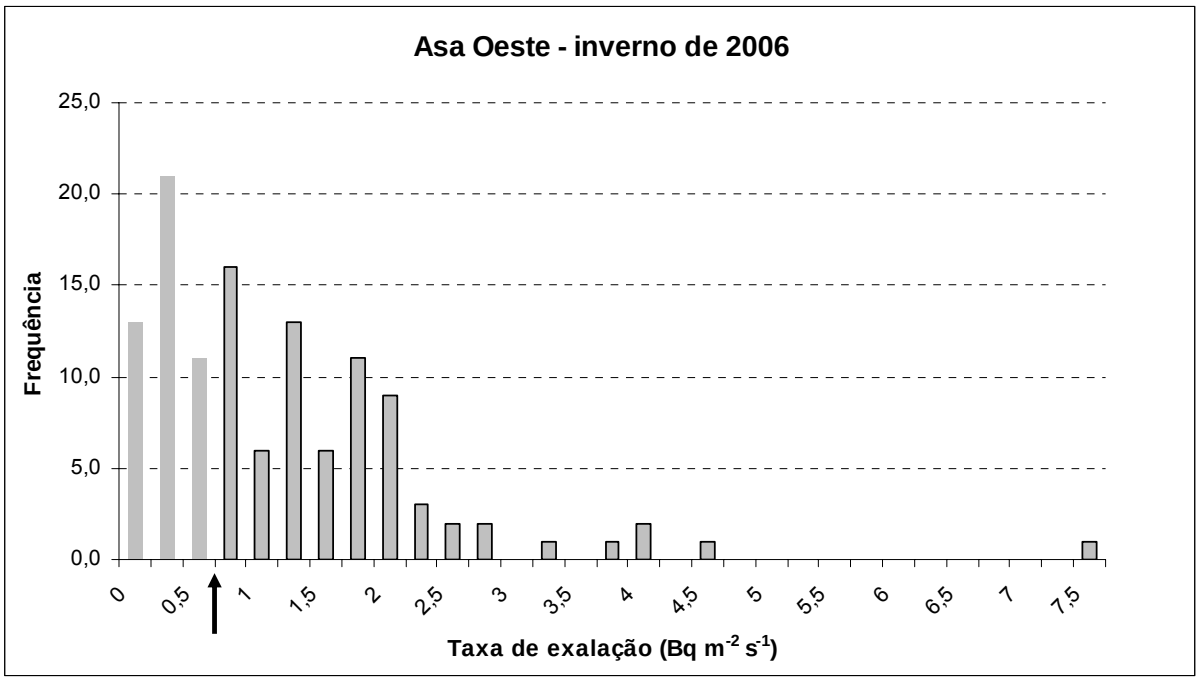

Figura 14. Freqüência das taxas de exalação de ^{222}Rn determinadas para a asa oeste no inverno de 2006

A seta escura nas Figuras 14 – 17, abaixo do eixo da abscissa, indica o valor de referência considerado.

As amostragens na asa oeste no verão de 2007 foram realizadas entre os dias 02/03 e 04/03. A média da taxa de exalação das 109 amostras tomadas foi 2,11 ± 2,12 Bq m^2 s^{-1} e a Figura 15 traz a distribuição dos valores de taxa de exalação.

Comparativamente, os dois resultados da asa oeste apontam para uma dependência inversa da exalação com a temperatura, resultando em valores quase duas vezes maiores entre as duas estações. Já na asa norte, esta dependência não foi observada, porém, este fato pode ser atribuído à umidade quase constante do rejeito, pois, mesmo em dias secos, a superfície do rejeito desta asa sempre apresentava características de muita umidade. Independentemente do dia em que se ia à bacia, sempre ficava a impressão de que havia chovido no dia anterior.

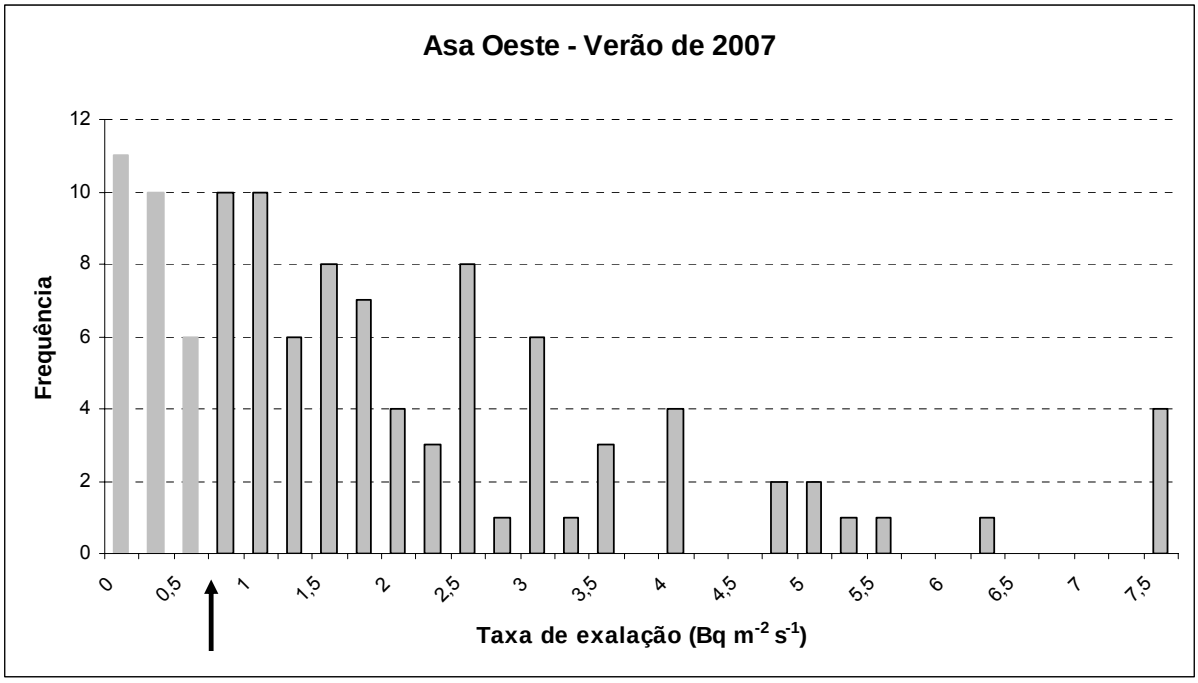

Figura 15. Freqüência das taxas de exalação de ^{222}Rn determinadas para a asa oeste no verão de 2007

Na asa norte, as amostragens de inverno foram realizadas entre os dias 20/08/2007 e 22/08/2007 e o número de amostras foi igual a 122. Os resultados

individuais são apresentados na Tabela 1 do Apêndice B e na Figura 16 é mostrado um histograma com a freqüência dos valores de taxa de exalação determinados. O valor médio obtido foi igual a 1,15 ± 1,67 Bq $m^2 s^{-1}$.

No início do ano de 2007, foram realizadas 82 amostragens na asa norte, entre os dias 07/03 e 07/05. Devido ao volume de chuvas da época, foram tomadas 60 amostras no verão (07/03/2007) e 22 no outono (07/05/2007) com valor médio de taxa de exalação igual a 1,03 ± 1,26 Bq $m^2 s^{-1}$. Na Tabela 3 do Apêndice B apresentam-se os resultados de taxa de exalação, enquanto na Figura 17 um histograma com a freqüência dos valores de taxa de exalação determinados.

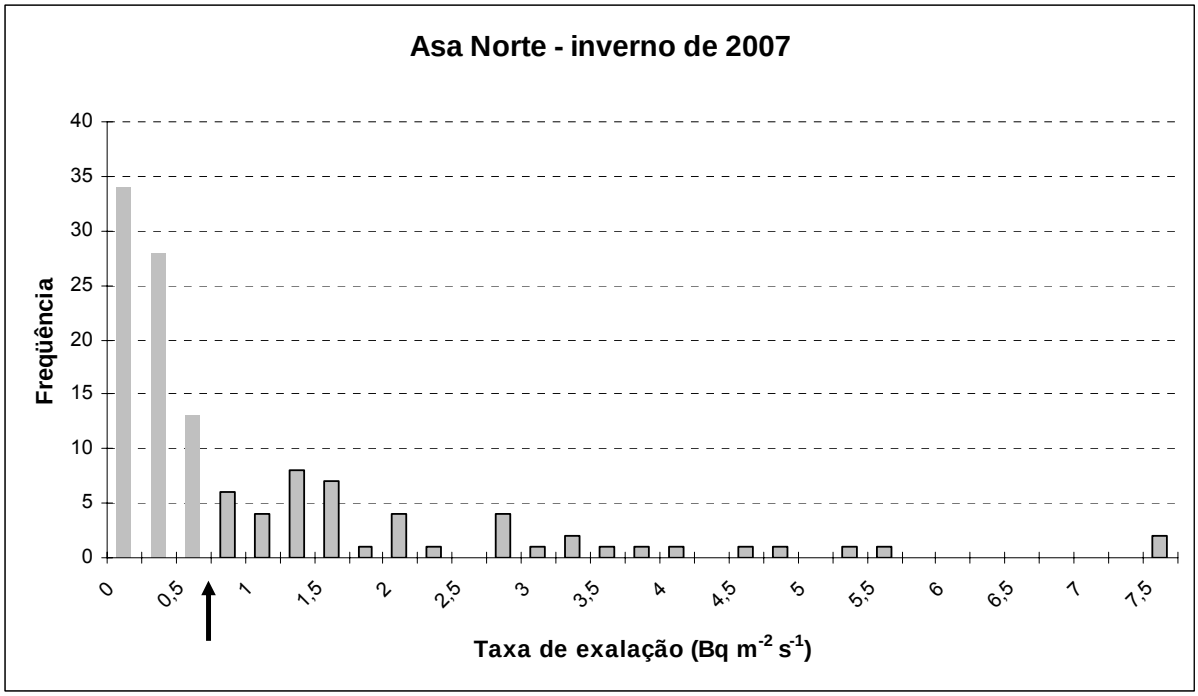

Figura 16. Freqüência das taxas de exalação de ^{222}Rn determinadas para a asa norte no inverno de 2007

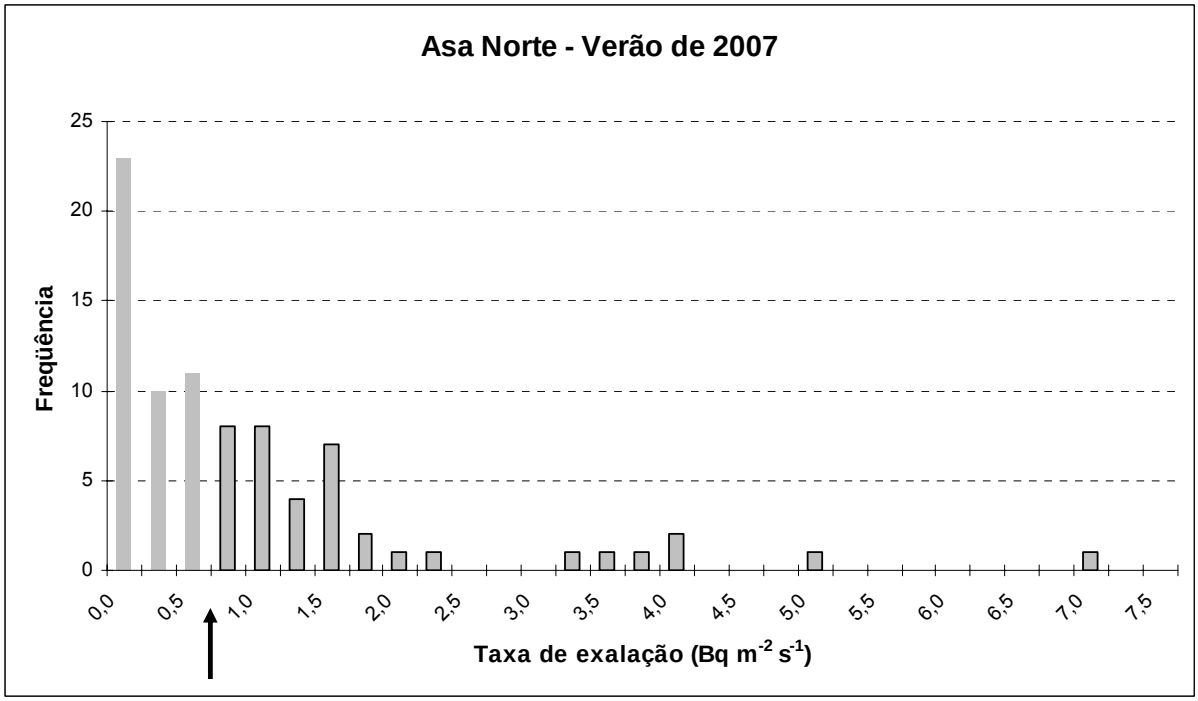

Figura 17. Freqüência das taxas de exalação de ^{222}Rn determinadas para a asa norte no verão de 2007

Considerando as áreas das duas asas (25462 m^2 para a asa oeste e 33386 m^2 para a asa norte) e um valor médio a partir dos resultados de exalação, fica-se com um total de 3,61 10^9 Bq dia^{-1}.

4.7 Os parâmetros do solo e rejeito do modelo de transporte de ^{222}Rn

Concentração de atividade de ^{226}Ra (R) no rejeito e solo – Os valores médios da atividade de ^{226}Ra (R) do primeiro conjunto de amostras do rejeito foram 6647 ± 1169 Bq kg^{-1} para as amostras de superfície e 6489 ± 1918 Bq kg^{-1} para as de fundo, como pode ser verificado na Tabela 10.

Tabela 10 – Concentrações de atividade de ^{226}Ra nas amostras de rejeito da UTM - Caldas

Amostra	Atividade de ^{226}Ra (Bq kg^{-1})					
	norte	centro	sul	leste	oeste (30m)	oeste (60m)
superfície	5664 ± 130	5965 ± 124	8405 ± 152	5727 ±129	6311 ± 129	7813 ± 147
fundo	6150 ± 128	5465 ± 120	5324 ± 121	6525 ± 130	10263±164	5211 ± 145

Os resultados anteriores apontaram para a necessidade de homogeneização do rejeito utilizado como fonte de ^{222}Rn na montagem das colunas de solo-rejeito.

O resultado médio do segundo conjunto de amostras de rejeito foi igual a 6799 ± 113 Bq kg^{-1}, obtido a partir de contagens apresentadas na Tabela 11.

Tabela 11 – Concentrações de atividade de ^{226}Ra nas amostras de rejeito da UTM - Caldas homogeneizado

Amostra	Atividade de ^{226}Ra (Bq kg^{-1})			
	1	2	3	4
A	6724 ± 62	6952 ± 70	6817 ± 67	6703 ± 62

A segunda etapa, realizada nas 12 amostras dispostas em garrafas PET resultou em um coeficiente de emanação médio igual a 7,01 ± 0,09 %. Os valores utilizados nesta determinação, excluídas 4 amostras cujas selagens não lograram êxito, são apresentados na Tabela 12.

Desta forma, a atividade de ^{226}Ra igual a 6799 ± 113 Bq kg^{-1}representa apenas a fração de sua atividade retida no retículo cristalino ou, percentualmente, igual a 93,04%, de onde se deduz que a atividade total de ^{226}Ra do rejeito é igual a 7311 ± 122 Bq kg^{-1}.

Para simples verificação da paridade entre as concentrações de atividades de ^{226}Ra nos rejeitos depositados nas duas asas da andorinha, foram tomadas quatro amostras de rejeito na asa norte e sua atividade média foi 6834 ± 907 Bq kg^{-1}.

Os procedimentos de contagem foram iguais aos das amostras de rejeito da asa oeste, inclusive o coeficiente de emanação.

Fernandes et al. (1996) em dois furos, um em cada asa, em 35 amostras estratificadas obteve valores inferiores a 3500 Bq kg^{-1}. Destas amostras, 12 foram tomadas em um furo de 1,20 m de profundidade na asa oeste e os valores relatados são todos menores que 1100 Bq kg^{-1}.

Coeficiente de emanação do rejeito e solo – O coeficiente de emanação do rejeito foi determinado através dos resultados apresentados na Tabela 12, durante a execução dos procedimentos descritos na segunda etapa de determinação do parâmetro Concentração de atividade de ^{226}Ra (R) no rejeito e solo da subseção 4.7 Os parâmetros do solo e rejeito do modelo de transporte de ^{222}Rn e foi igual a 7,01 ± 0,09 %.

Tabela 12 – Contagens gama do pico de 609 keV nas amostras de rejeito acondicionadas em garrafa PET de 185 mL antes e após equilíbrio secular

Ponto	Atividade de ^{226}Ra (Bq $amostra^{-1}$)							
	oeste	centro	leste		sul		norte	
	S	30cm	S	30cm	S	30cm	S	30cm
A_i	74403 ± 914	69376 ± 848	74353 ± 820	67851 ± 840	111889 ± 1104	61847 ± 757	74658 ± 834	65881 ± 783
A_f	79207 ± 884	74820 ± 839	79647 ± 791	71835 ± 829	120308 ± 1096	66387 ± 790	81739 ± 956	71232 ± 935

O coeficiente de emanação do solo utilizado nas colunas de solo-rejeito foi determinado empiricamente através do ajuste dos valores médios de taxa de exalação de ^{222}Rn com os valores teóricos (equação 21) do experimento em colunas de solo-rejeito (Tabela 16). Os valores medidos de taxa de exalação foram diminuídos da fração de exalação do solo, usando a equação 19, ajustando-se o valor do coeficiente de emanação do solo. O valor de E_s que possibilitou o melhor

ajuste foi 14,7 %, porém, as condições de contorno que levaram a este resultado serão discutidas mais detalhadamente na subseção 4.8 O solo estudado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn.

Densidades do rejeito e solo – Os resultados de densidade de solo medidos pelo método da escavação foram 1230 ± 25 kg, 1261 ± 25 kg e 1289 ± 26 kg com um valor médio igual a 1260 ± 29 kg – densidade de campo. No caso das colunas de solo-rejeito, a massa específica aparente seca máxima foi determinada a partir do ensaio de compactação e foi 1686 ± 41 kg m^{-3}.

Para o rejeito, a massa adicionada em cada coluna foi 306 ± 6 kg e o volume determinado em uma das colunas foi 0,198 ± 0,005 m^3, resultando em uma densidade igual a 1545 ± 36 kg m^3.

Alturas do perfil de rejeito – Nas colunas de solo-rejeito, a altura do perfil utilizado foi igual a 0,50 m. Para o depósito de rejeito da UTM – Caldas, devido à ação inibidora da emanação de ^{222}Rn em perfis saturados, a espessura do perfil nas asas norte e oeste foi determinada por observação em furos utilizando uma cavadeira, com valor máximo encontrado entre o perfil de água e a superfície de 1,2 m. A distância entre a superfície e o perfil de água foi medida em várias escavações, convenientemente espaçadas. Durante as escavações ficou evidente que a superfície da asa norte está próxima do perfil de água e a asa oeste apresenta valores variando de 0,0 m a até 1,2 m.

Coeficientes de difusão do rejeito e do solo – Os coeficientes de difusão do rejeito seco para as colunas de 0,50 m até 2,10 m são apresentados na Tabela 13. Ela mostra os resultados das taxas de exalação médias obtidas nas colunas de rejeito seco e os valores calculados de coeficientes de difusão para cada uma das

colunas considerando as constantes de entrada da equação 19, mencionadas na subseção 3.5.7 Parâmetros de campo do modelo de transporte de ^{222}Rn.

Tabela 13 – Coeficiente de difusão (D) calculado usando a taxa de exalação (J) determinada com o coletor 607 em cada coluna de rejeito seco. O valor teórico de taxa de exalação (J_t) foi obtido usando o coeficiente de difusão médio

Coluna	C3	C4	C5	C6	C7	C8
Altura de rejeito (m)	0,50	0,70	0,90	1,30	1,70	2,10
J (Bq m^{-2} s^{-1})	0,78	1,07	1,34	1,82	1,89	2,08
D ($10^{-6}m^2$ s^{-1})	3,9	5,0	5,5	6,9	3,9	4,1
J_t (Bq m^{-2} s^{-1})	0,79	1,07	1,32	1,73	2,02	2,21

O coeficiente de difusão médio para o rejeito radioativo da UTM – Caldas nas condições da subseção 3.5.4 Preparação do solo e rejeito para montagem das colunas, nas colunas de rejeito seco foi igual a $4,9 \pm 1,3\ 10^{-6}\ m^2\ s^{-1}$. Com este coeficiente de difusão médio, foram calculados os valores teóricos de exalação de ^{222}Rn, apresentados na última linha da Tabela 13.

No experimento das colunas de solo-rejeito, foi determinado o coeficiente de difusão do rejeito úmido na coluna sem cobertura de solo e ele foi igual a $6,0 \pm 1,2\ \ 10^{-7}\ m^2s^{-1}$. Para sua determinação, foi utilizada a equação 19 e o valor médio de exalação de ^{222}Rn apresentado na primeira linha da Tabela 16. O teor de umidade do rejeito nesta coluna foi 10,5 ± 0,1 %.

Para o solo das colunas de solo-rejeito, foi determinado um coeficiente de difusão médio igual a $5,3 \pm 3,3\ 10^{-8}\ \ m^2$ s. Este valor foi calculado pela média dos coeficientes de difusão determinados através dos resultados apresentados na Tabela 16 e equação 29.

O coeficiente de difusão do solo também foi determinado através da equação 30 e foi igual a 7,48 10^{-8} m^2 s e o valor de umidade de saturação utilizado foi 0,833.

A densidade específica – Os resultados obtidos para o solo de montagem das colunas de solo-rejeito foram 2,51 ± 0,1 g cm^{-3}, 2,52 ± 0,1 g cm^{-3} e 2,52 ± 0,1 g cm^{-3}, enquanto para o rejeito foram 2,66 ± 0,01 g cm^{-3}, 2,66 ± 0,01 g cm^{-3} e 2,67 ± 0,01 g cm^{-3} e as respectivas umidades iniciais das amostras foram 0,0428, 0,0515 e 0,0482 para o solo e 0,0050, 0,0015 E 0,0045 para o rejeito.

Porosidades calculadas do rejeito e do solo – Nas determinações de porosidade, foi utilizado o valor máximo da massa específica seca, 1686 ± 41 kg m^{-3}, obtida no ensaio de compactação na subseção 4.8 O solo estudado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn e a densidade específica determinada nesta subseção. A porosidade calculada para o solo a partir da densidade do solo das colunas de solo-rejeito foi igual a 0,329 e 0,420 para o rejeito.

A capacidade de campo – A capacidade de campo foi determinada para 3 amostras de solo tomadas a profundidades maiores que 1,20 m. As amostragens foram realizadas com trado mecânico e acondicionadas em sacos plásticos e secas em estufa a 105°C, até massa constante. As massas foram obtidas em balança de duas casas e os resultados foram 0,383, 0,451 e 0,404, resultando em um valor médio igual a 0,412 ± 0,35.

A granulometria – Os gráficos dos ensaios de granulometria das frações retidas são apresentados na Figura 18. Na Figura 19 podem ser visualizadas fotos obtidas por microscopia óptica da fração que passou na peneira de 0,038 mm. Na mesma figura, observa-se que a maioria dos grânulos que passaram na peneira de 0,038 mm tem dimensões menores que este valor.

Embora não tenha sido realizada análise granulométrica por sedimentação, pode-se inferir da Figura 18 e 19, que as frações de silte e argila são as componentes principais das amostras – mais de 80 % (VARGAS, 1978).

Cardoso Neto (1997) apresenta uma classificação textural de solos, de acordo com a classificação do Departamento de Agricultura dos Estados Unidos, segundo frações percentuais de areia, argila e silte. Segundo as propriedades dimensionais das partículas das amostras de solo, pode-se deduzir que ele tem característica argilosa ou argilosa-siltosa. O autor mostra que existe correlação entre a classe textural do solo, a capacidade de campo e o ponto de murchamento permanente.

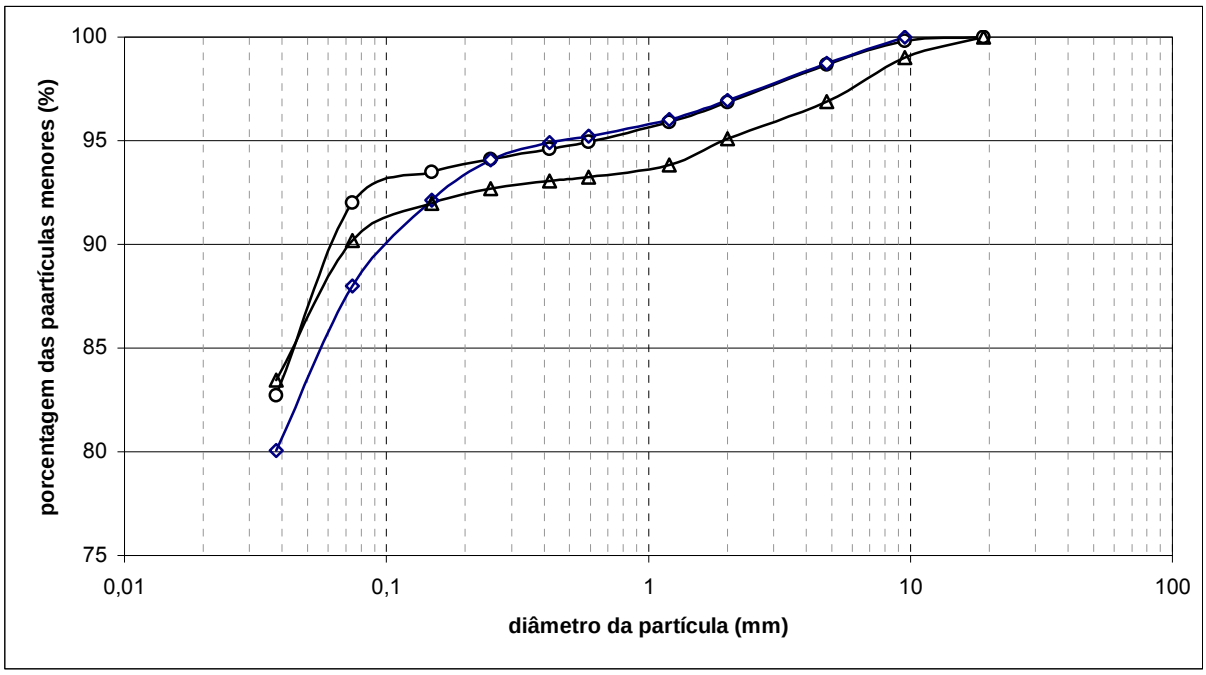

Figura 18. Granulometria das 3 amostras de solo antes da preparação para enchimento das colunas de solo-rejeito

O modelo de exalação utilizado neste trabalho necessita do valor da água disponível no solo das imediações da bacia de rejeitos da UTM – Caldas. Devido à sua classe textural e à capacidade de campo igual a 0,412, então, foi inferido que o ponto de murchamento permanente do solo estudado é da ordem de 0,25.

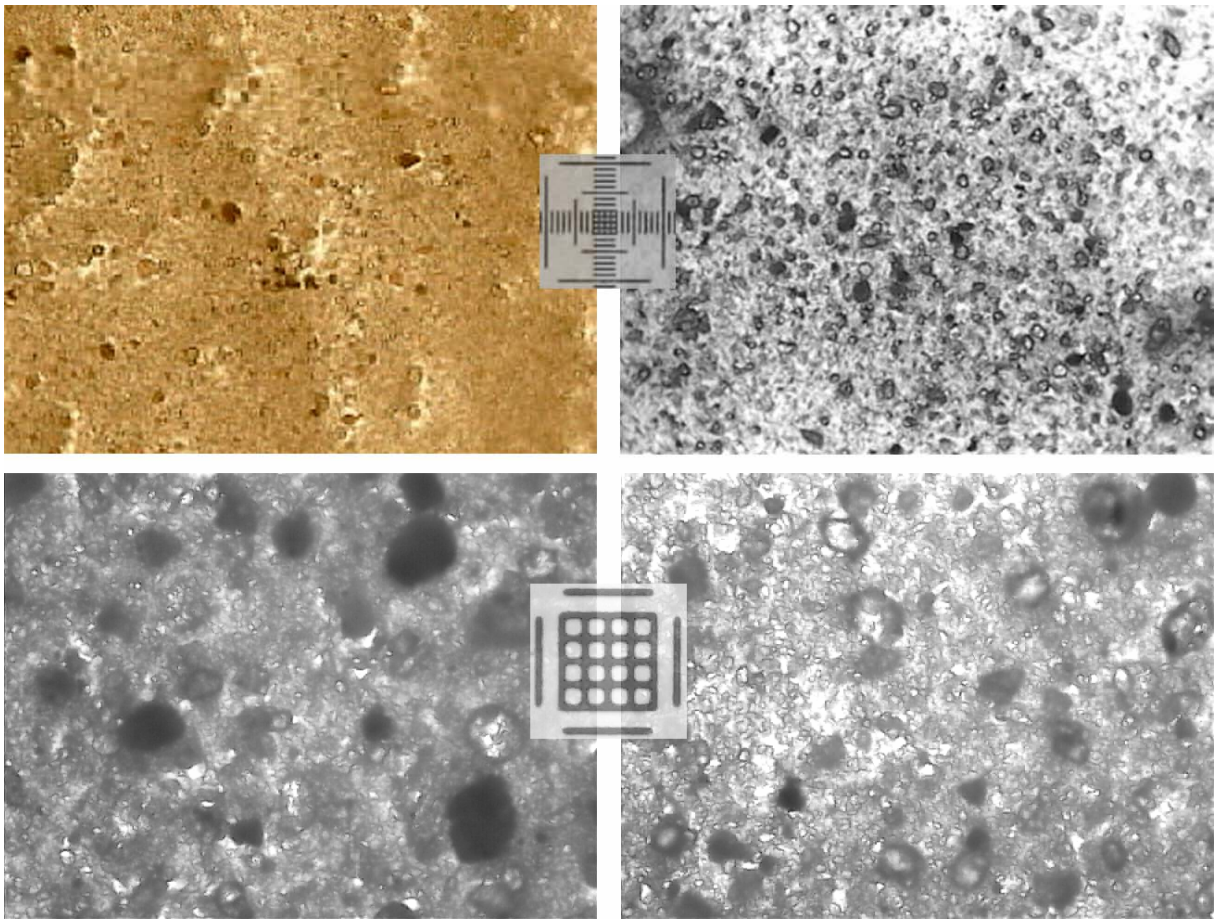

Figura 19. Fotos do solo da fração que passou na peneira de 0,038 mm em microscópio óptico (fotos menores 1 divisão = 0,01 mm)

4.8 O solo estudado como elemento atenuador da exalação de ^{222}Rn

Como foi mencionado na subseção 3.5.5 Procedimentos de montagem das colunas, foi determinada a umidade ótima de compactação segundo os procedimentos da norma NBR 7182 – Solo – Ensaios de compactação (ABNT,

1986b). Os valores de massas obtidos no ensaio e os resultados massa específica seca e teor de umidade são apresentados na Tabela 14, bem como o gráfico utilizado para obtenção da umidade ótima de compactação e respectiva densidade ótima de compactação está na Figura 20.

Tabela 14 – Massas medidas e valores obtidos para determinação da umidade e densidade ótima de compactação ($m_{cilindro}$ = 2,230 ± 0,020 g, $V_{cilindro}$ = 0,00098170 m^3) segundo norma NBR 7182

Compactação	1	2	3	4	5
Massa cil. + solo úmido(g)	3580	3780	4280	4020	3910
Massa solo úmido (g)	1350	1550	2050	1790	1680
Massa específica úmida (g/cm^3)	1,38	1,58	2,09	1,82	1,71
Massa específica seca (g/cm^3)	1,26	1,39	1,69	1,40	1,25
Massa cap. + solo úmido (g)	106,30	113,70	111,70	126,80	116,60
Massa cap. + solo seco (g)	105,20	111,75	108,10	122,05	111,50
Massa cápsula (g)	93,50	97,55	93,00	106,40	97,65
Massa de água (g)	1,10	1,95	3,60	4,75	5,10
Massa de sólidos (g)	11,70	14,20	15,10	15,65	13,85
Teor de umidade (%)	9,40	13,73	23,84	30,35	36,82

O valor utilizado para umidade ótima de compactação do solo foi 24,0 % e a densidade correspondente foi 1,69 10^3 kg m^{-3}.

Decorrente destes valores, foi iniciada a montagem das colunas. Os solos utilizados tiveram suas umidades corrigidas para valores próximos da ótima e os valores obtidos, em camadas de 0,20 m, de massas específicas secas e úmidas e graus de compactação para as colunas, compactadas em camadas de 10 cm, estão apresentados na Tabela 15.

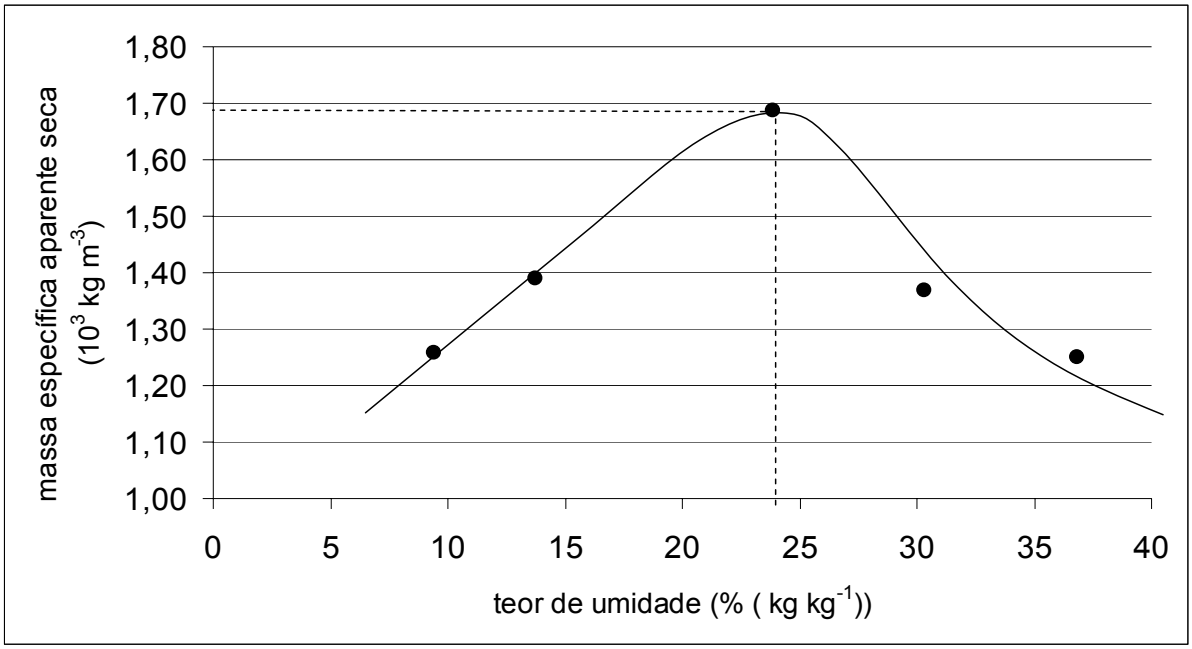

Figura 20. Gráfico utilizado para obtenção da umidade ótima de compactação e massa específica seca para compactação do solo utilizado nas colunas de solo-rejeito

Tabela 15 – Graus de compactação para as colunas de solo-rejeito medidas após compactação de camadas de 0,2 m em cada coluna

Coluna (m)	0,20	0,40		0,60		
Camada de compactação (m)	0,20	0,20	0,40	0,20	0,40	0,60
Massa específica úmida	1,99	1,99	1,93	1,91	2,05	1,97
Massa específica aparente seca	1,58	1,64	1,59	1,53	1,71	1,64
Grau de compactação	93,5	97,0	94,1	91,7	101,0	97,0

Desta forma, pode-se afirmar que as colunas foram montadas de acordo com as exigências apresentadas no documento da USNRC (2007). Portanto, esta montagem e os resultados obtidos podem ser utilizados para medida da capacidade de atenuação da taxa de exalação de ^{222}Rn pelo solo das imediações da bacia de rejeitos radioativos da UTM - Caldas.

Na Figura 21, são mostradas as colunas de solo-rejeito e a disposição dos coletores 607 durante a amostragem de taxa de exalação de ^{222}Rn.

Cerca de duas semanas após a montagem das colunas, foram realizadas 5 amostragens para determinação das taxas de exalação de ^{222}Rn em cada coluna e os resultados de cada coletor e médios para cada coluna são apresentados na Tabela 16. O tempo de amostragem foi igual a 1,96 dias e as determinações de atividade gama foram realizadas no Laboratório de Radioisótopos do Centro de Energia Nuclear na Agricultura (CENA), em espectrômetro gama com detector de germânio hiperpuro com eficiência de 45%, marca Ortec.

Figura 21. Colunas de solo-rejeito e coletores 607 durante amostragem

Na condição de disposição de rejeito nas colunas de solo-rejeito, considerou-se como inexistente o fluxo para baixo, porém, para o solo de cobertura, esta condição pode não ser válida, uma vez que o solo está espacialmente limitado por duas fronteiras, uma acima, com a atmosfera, e outra abaixo, com o rejeito. Com

isso, os valores medidos de taxas de exalação de ^{222}Rn nas colunas são iguais à soma de duas porções, uma gerada no rejeito e outra no solo.

Sendo assim, os valores apresentados na Tabela 16 devem ser diminuídos da fração correspondente à exalação de ^{222}Rn do solo usado como cobertura. A concentração de ^{226}Ra no solo foi medida em 3 amostras na geometria 607, em tempos de contagens iguais a 36000 s em detector de NaI, e o valor médio delas foi igual a 241 ± 15 Bq kg^{-1}.

Tabela 16 – Resultados de taxa de exalação ^{222}Rn nas colunas de solo-rejeito

Altura de camada de solo (m)	J (Bq m^{-2} s^{-1})	$\bar{J}$ (Bq m^{-2} s^{-1})
0	0,501 ± 0,052	
0	1,10 ± 0,12	
0	0,379 ± 0,080	0,654 ± 0,280
0	0,266 ± 0,028	
0	0,633 ± 0,066	
0,20	0,152 ± 0,017	
0,20	0,049 ± 0,006	
0,20	0,081 ± 0,009	0,087 ± 0,036
0,20	0,091 ± 0,011	
0,20	0,062 ± 0,007	
0,40	0,040 ± 0,005	
0,40	0,045 ± 0,005	
0,40	0,037 ± 0,004	0,051 ± 0,010
0,40	0,068 ± 0,008	
0,40	0,064 ± 0,007	
0,60	0,036 ± 0,004	
0,60	0,033 ± 0,004	
0,60	0,033 ± 0,004	0,035 ± 0,005
0,60	0,042 ± 0,005	
0,60	0,033 ± 0,004	

Em valores percentuais, a porção que atinge a atmosfera resultando no melhor ajuste dos dados de amostragem com os valores teóricos determinados através da equação 21 indicou um valor de coeficiente de emanação para o solo igual a 14,7 %, considerando nula a exalação no sentido solo-rejeito. Assim, o valor 241 ± 15 Bq kg^{-1} é igual à fração de atividade de ^{222}Rn que fica retida no solo, ou seja, 85,3 % da atividade de ^{226}Ra do solo. Portanto, a atividade total de ^{226}Ra no solo é 283 Bq kg^{-1}.

A razão de atenuação, equação 36, foi utilizada para quantificar a eficiência de atenuação das taxas de exalação de ^{222}Rn nas colunas com solo. Os valores obtidos, usando a equação 36, são mostrados na Tabela 18.

$$R_{at} = \frac{\overline{J}}{\overline{Js}} \tag{36}$$

onde

$\overline{J}$ = valor médio de taxa de exalação de ^{222}Rn determinado na coluna sem solo

$\overline{Js}$ = valor médio determinado nas colunas com solo

Os parâmetros de entrada do modelo tratado na subseção 3.5.1 O modelo de transporte de ^{222}Rn e aplicados na equação 21 são apresentados a seguir e os resultados obtidos, J_t (calculado), usando estes valores são apresentados na primeira coluna da Tabela 17:

A Figura 22 mostra graficamente os valores de razões de atenuação determinadas segundo as considerações apresentadas anteriormente para o coeficiente de emanação do solo. Pode-se observar a validade de diferenciação das frações de emanação de ^{222}Rn provenientes do rejeito e solo nas colunas de solo-

rejeito. Também, é evidente que sem a diferenciação há uma divergência entre os valores teóricos e medidos.

Tabela 17 – Taxas de exalação para a amostragem realizada nas colunas de solo-rejeito considerando valores distintos de coeficientes de emanação

Altura de camada de solo (m)	Taxas de exalação (Bq m^{-2} s^{-1})		
	J_t (calculado)	$\bar{J}$ (Bq m^{-2} s^{-1})	Jc (E = 14,7 %)
0,0	0,644	0,654	0,654
0,20	0,064	0,087	0,065
0,40	0,022	0,051	0,024
0,60	0,0075	0,035	0,008

Os valores de taxa de exalação para as 3 camadas de solo que foram deduzidas do valor de taxa de exalação médio ($\bar{J}$) foram determinados utilizando a equação 19

- Espessura da camada de rejeito e solo de cobertura: x = 0,50 m e x_{c1} = 0,20 m, x_{c2}= 0,40 m e x_{c3} = 0,60 m
- Densidade da camada de rejeito e solo de cobertura: ρ_r = 1545 ± 36 kg m^3. ρ_s = 1680 ± 40 kg
- Densidade da água: ρ_a =1000 kg m^{-3}
- Densidade específica da camada de rejeito e solo de cobertura: G_r = 2,66 e G_s = 2,51
- Concentração de atividade de ^{226}Ra da camada de rejeito e solo de cobertura: $Ar_{^{226}Ra}$ = 7311 ± 122 Bq kg^{-1}, $As_{^{226}Ra}$ =298 ± 20 Bq kg^{-1}

- Coeficiente de difusão da camada de rejeito e solo de cobertura:

$D_{r(seco)} = 4,9 \pm 1,3\ 10^{-6}\ m^2\ s^{-1}$, $D_{r(úmido)} = 6,0 \pm 3,8\ 10^{-7}\ m^2\ s^{-1}$,

$D_s = 5,3 \pm 3,4\ 10^{-8}\ m^2\ s^{-1}$ $D_s = 7,5 \pm 4,9\ 10^{-8}\ m^2\ s^{-1}$ (equação 30)

O valor de D_s, determinado através da equação 30, foi utilizado por ser mais conservativo que aquele determinado pela equação 29.

Tabela 18 – Razões de atenuações teórica e considerando E = 14,7 % para a amostragem realizada nas colunas de solo-rejeito

Altura de camada de solo (m)	Razão de atenuação		
	R_t (teórica)	(E = 0 %)	(E = 19,0 %)
0,0	1,0	1,0	1,0
0,20	10	7,5	10
0,40	29	13	28
0,60	86	19	83

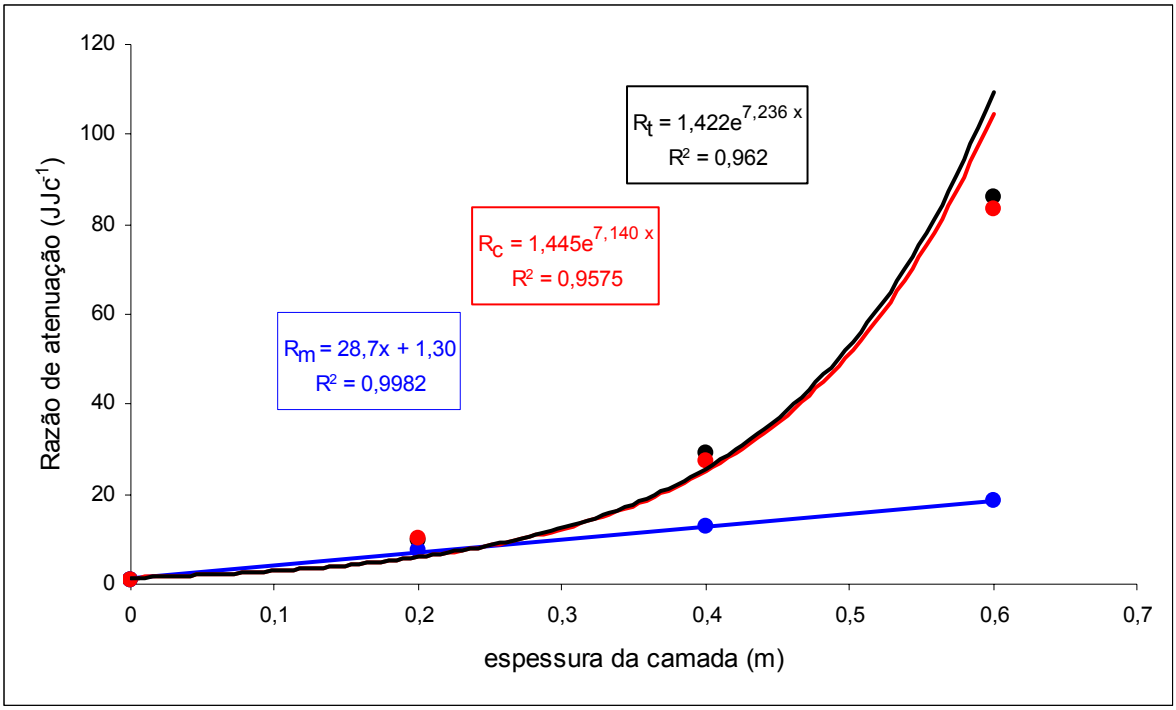

Figura 22. Gráfico das razões de atenuação teórica (preto), experimental (azul) e considerando coeficiente de emanação igual a 19 % (vermelho)

- Coeficiente de emanação da camada de rejeito e solo de cobertura: E_r = 7,0 ± 1,0 %, E_s = 14,7 %
- Coeficiente de distribuição para ^{222}Rn entre água e ar: k = 0,26 Bq m^{-3} de água por Bq m^{-3} de ar
- Porosidade calculada da camada de rejeito e solo de cobertura: n_r = 0,420 e n_s = 0,329
- Fração de umidade de saturação do rejeito e solo de cobertura: m_r = 0,221 e m_s = 0,833
- Capacidade de campo da camada de solo de cobertura: w_s=0,412
- Ponto de murchamento permanente do solo de cobertura: 0,25 (valor estimado)

A equação que melhor se ajustou aos dados experimentais, representados na Figura 22 pela linha em vermelho, foi exponencial. Resolvendo aquela equação para x em relação à razão de atenuação mínima (R_{atm}), fica-se com a expressão algébrica da equação 37.

$$x > 0{,}140 \ln R_{atm} - 0{,}052 \qquad (37)$$

onde

x = espessura da camada de cobertura (m)

R_{atm} = razão de atenuação mínima

A equação 36 pode ser estendida para determinar a razão de atenuação mínima, neste caso igual ao quociente entre o valor medido em campo de taxa de exalação de ^{222}Rn e o valor de referência considerado.

$$R_{atm} = \frac{J}{L} \tag{38}$$

onde

J = valor médio de taxa de exalação de ^{222}Rn determinado em campo;

L = valor de referência de taxa de exalação de ^{222}Rn.

Considerando-se o limite da USEPA de 0,74 Bq m^{-2} s^{-1} como valor de referência e os valores máximos de taxa de exalação de ^{222}Rn como a soma do maior valor médio obtido para cada asa com seu respectivo desvio padrão, obtêm-se 2,82 Bq m^{-2} s^{-1} (1,15 + 1,67) para o inverno de 2007 para a asa norte e 4,13 Bq m^{-2} s^{-1} (2,11 + 2,12) para a asa oeste no verão de 2007. Assim, os valores de espessura de camada para que a exalação seja menor que o valor de referência é 0,136 m para a asa norte e 0,193 m para a asa oeste.

A análise dos valores médios obtidos para as taxas de exalação das duas asas, nas estações consideradas, e das razões de atenuação da Tabela 18 permite considerar que coberturas de 0,20 m de solo na asa oeste e 0,14 m na asa norte deverão resultar em redução da taxa exalação de ^{222}Rn para valores abaixo daquele considerado como referência, desde que mantidos a altura do lençol freático e os procedimentos de compactação.

Fernandes (1997) considera que “uma camada de 1 m de argila, com coeficiente de difusão da ordem de 10^{-8} m^{2} s^{-1} será uma opção válida para reduzir as exposições inadvertidas ao ^{222}Rn”. Este valor foi superestimado e comparando-se com o resultado apresentado nesta tese representa diferença da ordem de 80 % nos custos relacionados com o deslocamento de material.

4.9 Considerações finais sobre as camadas de solo de cobertura da bacia de rejeitos radioativos da UTM - Caldas

Embora os valores de espessura mencionados anteriormente sejam pequenos, deve-se considerar que eles foram obtidos em condições de laboratório. Sendo as condições de campo ou ambientais mais severas, este valor deve ser reavaliado segundo aspectos de durabilidade e estabilização.

A durabilidade e estabilização da camada de cobertura são fatores importantes e, tanto quanto a espessura, devem ser avaliados à luz de variáveis ambientais decorrentes da ação de intempéries considerando, principalmente, que a meia-vida do ^{226}Ra é igual a 1600 anos.

A estabilização da camada de atenuação, em virtude da necessidade de durabilidade, deverá ser associada a camadas adicionais de elementos protetores. Entenda-se por elementos protetores, qualquer barreira interposta acima ou abaixo da camada de solo inibidora da taxa de exalação, tais como uma camada adicional de solo fértil, camada de calcáreo dolomítico para elevação de pH do rejeito e revegetação adequada.

Uma camada de material argiloso, bem dimensionada, também favorece a redução de outro problema clássico de bacias de rejeito: a drenagem ácida. Este fenômeno pode ser atenuado com a adição de calcáreo dolomítico junto ao rejeito, debaixo da camada de solo argiloso. Esta última, adequadamente compactada, apresenta baixa condutividade hidráulica e aeração, fatores inibidores da drenagem ácida (SOUZA; BORMA; MENDONÇA, 2003).

Os principais fatores de degradação de uma camada argilosa são recalques e ciclos de umedecimento e secagem, surgindo frequentemente fissuras e rachaduras (SOARES; TRINDADE, 2003). A estes fatores, somam-se ainda o índice pluviométrico, a distribuição anual de chuvas, a intensidade de períodos de seca, a evapotranspiração, etc. Desta forma, pode-se concluir que, independentemente da espessura da camada de argila sugerida para atenuação da taxa de exalação de ^{222}Rn da bacia de rejeitos radioativos, deve-se vincular sua execução a um segundo sistema de proteção.

Decorrente da meia-vida do ^{226}Ra ser 1600 anos, um sistema de proteção deve oferecer garantias de estabilidade e longevidade e, através de modelagem adequada, uma proteção efetiva de pelo menos metade deste valor. Além disto, o projeto de cobertura seca deve ser avaliado segundo aspectos de contenção de drenagem ácida.

Uma opção para proteção da camada de argila seria a adição de uma camada de solo fértil que garanta a sustentabilidade de uma revegetação constituída, principalmente, de espécies vegetais nativas existentes dentro e nas cercanias da UTM – Caldas. Esta é uma filosofia preservacionista, alinhada com pensamentos modernos de recuperação e preservação ambiental.

5. CONCLUSÕES

O coletor de ^{222}Rn, denominado 607, apresentou excelente desempenho quanto à precisão e exatidão de mensuração de taxa de exalação de ^{222}Rn em condições de laboratório. Mostrou-se, ao contrário do coletor de grande área, incólume frente à coadsorção de vapor d'água e, portanto, eficiente na transferência de seu desempenho de bancada para o campo. Apresentou, ainda, caráter prático e versátil, principalmente para delineamento experimental que exija número elevado de coletores. Frente ao que foi apresentado, apesar de ser uma técnica mundialmente conhecida e difundida, provou-se, durante o desenvolvimento e execução deste trabalho, que ela ainda apresentava espaço amplo para avanço tecnológico.

O coletor de ^{222}Rn, denominado grande área, apresentou forte dependência com relação à coadsorção de vapor d'água, resultando em necessidade de correção dos valores mensurados. Apesar de sua normatização, é recomendável que seja utilizado com cautela, principalmente em substratos úmidos ou por períodos de tempo superiores a 24 h.

O padrão de trabalho de taxa de exalação de ^{222}Rn, criado para testes de amostragens, apresentou equivalência entre o resultado teórico e aquele determinado a partir de amostragens realizadas pelos coletores 607 e grande área – dentro das limitações de tempo de amostragem ou de adsorção de vapor d'água. A validação do padrão e da metodologia de coleta disponibiliza uma tecnologia melhorada de amostragem e de construção de padrões de trabalho de exalação de ^{222}Rn para esta área da ciência em nível mundial.

Se for considerado como limite de exalação de ^{222}Rn o valor aceito pela USEPA de 0,74 Bq m^{-2} s^{-1}, devido à ausência de normatização brasileira, então, as taxas de exalação de ^{222}Rn para os 2 locais passíveis de monitoração da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas apresentoram, para as 2 estações do ano avaliadas, valores médios superiores.

O solo das imediações da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas mostrou-se eficiente quanto à sua capacidade de atenuação da taxa de exalação de ^{222}Rn – seguindo procedimentos de compactação da USRNC (1989). Os valores de espessura de cobertura determinados para a bacia de rejeitos (considerando 0,74 Bq m^{-2} s^{-1} como valor limite) devem ser vistos com cautela, principalmente devido à necessidade de estabilização do sistema a muito longo prazo.

Meritório ressaltar o caráter de pioneirismo em termos de Brasil dos resultados consolidados nesta pesquisa, que vincula procedimentos de preparação de coletores, amostragem, determinações, delineamento experimental e criação de padrões de trabalho. Agrega-se ainda mais valor, principalmente, pelo fato de os procedimentos terem sido validados em condições laboratoriais e utilizados na primeira área da indústria nuclear brasileira em processo de descomissionamento.

6. REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

ALMEIDA, G. C. P. **Caracterização física e classificação de solo**. Juiz de Fora: Universidade Federal de Juiz de Fora, 2005. 145 p. Disponível em: http://www.geotecnia.ufjf.br/MECSOL/APOSTILA2005.pdf. Acesso em: 28 jul. 2008.

AMIN, Y. M.; MAHAT, R. H.; DORAISAMY, S. J.; SUBRAMANIAN, S. Y. The effects of grain size on the radon emanation rate. **Applied Radiation and Isotopes**, Oxford, v. 46, n. 6/7, p. 621-622, 1995.

ASSIS, S.V. **Umidade do solo**. Pelotas: Faculdade de Meteorologia, UFPel, 2002. 17 p. (Unidade, 5). Disponível em: http://minerva.ufpel.edu.br/~assis/agro/agro_05.doc. Acesso em: 04 abr. 2008.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **Amostras de solo – Preparação para ensaios de compactação e ensaios de caracterização**: NBR 6457. Rio de Janeiro: ABNT, 1986a. 9p.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **Grãos de solos que passam na peneira de 4,8 mm – Determinação da massa específica**: NBR 6508. Rio de Janeiro: ABNT, 1984a. 8p.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **Solo – Análise granulométrica**: NBR 7181. Rio de Janeiro: ABNT, 1984b. 13p.

ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE NORMAS TÉCNICAS. **Solo – ensaio de compactação** – NBR 7182. Rio de Janeiro: ABNT, 1986b. 10p.

BIONDI, J. C. **Processos metalogenéticos e os depósitos minerais brasileiros**. São Paulo: Oficina de Textos, 2003. 528 p.

BENSON, C. H. Final covers for waste containment systems: A north american perspective. In: Conference of geotechnics of Torino, 17., Torino. **Control and management of subsoil pollutants**. Torino, Italy: Geotechnical Society, 1999. 32 p.

BURNETT, W. C.; CABLE, P. H.; CHANTON, J. P. A simple passive collector for direct measurement of radon flux fron soil. **Journal of Radioanalytical Chemistry**, Amsterdam, v. 193, n. 2, p. 281-290, 1995.

CARDOSO NETO, A. **As propriedades do solo**. Florianópolis: Departamento de Engenharia Sanitária, Universidade Federal de Santa Catarina, 1997/98. 15 p. (Tópicos Básicos de Irrigação, 2º Fascículo). Disponível em: http://www.ana.gov.br/AcoesAdministrativas/CDOC/ProducaoAcademica/Antonio%20Cardoso%20Neto/As%20Propriedades%20do%20solo_T%F3picos%20B%E1sicos%20de%20Irriga%E7%E3o%20%20_2%BA%20Fasc%EDculo.pdf. Acesso em: 10 jul. 2008.

CENTRO DE ENERGIA NUCLEAR NA AGRICULTURA – CENA. Determinação da densidade e umidade do solo, por atenuação e retroepalhamento de raios gama. http://web.cena.usp.br/apostilas/Osny. Acesso em: 04 abr. 2008.

CHAUHAN, R.P.; CHAKARVARTI, S.K. Radon diffusion through soil and fly ash: effect of compaction. **Radiation Measurements**, Oxford, v. 35, p. 143-146, 2002.

CIPRIANI, M. Mitigação dos impactos sociais e ambientais decorrentes do fechamento definitivo de minas de urânio. 2002. p. 363.Tese (Doutorado em Geociências) – Instituto de Geociências – Universidade de Campinas, Campinas, 2002.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Diretrizes básicas de radioproteção**. Rio de Janeiro: CNEN, 2005. (CNEN-NN-3.01). Disponível em: http://www.cnen.gov.br/seguranca/normas/normas.asp?grupo=3. Acesso em: 05 jul. 2008.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Diretrizes básicas de radioproteção**. Posição regulatória 3.01/003. Coeficientes de dose para indivíduos ocupacionalmente expostos. Rio de Janeiro: CNEN, 2005b. Disponível em: http://www.cnen.gov.br/seguranca/nor mas/mostra-posreg.asp?op=301&np=03. Acesso em: 05 jul. 2008.

COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. **Gerência de rejeitos radioativos em instalações radioativas**. Rio de Janeiro: CNEN, 1985. 36 p. (CNEN-NE-6.05). Disponível em: http://www.cnen.gov.br/seguranca/normas/mostra-norma.asp?op=605. Acesso em: 05 jul. 2008.

COHEN, B.L.; COHEN, E. S. Theory and practice of radon monitoring with charcoal adsorption. **Health Physics**, New York, v. 45, n. 2, p. 501-508, 1983.

COHEN, L. B.; NASON, R. A diffusion barrier charcoal adsorption collector for measuring Rn concentrations in indoor air. **Health Physics**, New York, v. 50, n. 4, p. 457-463, 1986.

COUNTESS, R. J. ^{222}Rn flux measurement with a charcoal canister. **Health Physics**, New York, v. 31, p. 455-456, 1976.

FERNANDES, H. S. M. F.; FRANKLIN, M. R.; VEIGA, L. H. S.; FREITAS, P.;GOMIEIRO, L. A. Management of uranium mill tailing: geochemical processes and radiological risk assessment. **Journal of Environmental Radioactivity.** Barking, v. 30, p. 69-95, 1996.

FERNANDES, H. S. M. F. **Subsídios ao descomissionamento de mineração e beneficiamento de urânio no Brasil** – O caso do Complexo Mínero Industrial de Poços de Caldas – MG. 1997. p. 250 Tese (Doutorado em Geoquímica) – Universidade Federal Fluminense, Niterói, 1997.

FERRY, C.; RICHON, P.; BENEITO, A.; ROBÉ, M. C. Radon exhalation from uranium mill tailings: experimental validation of a 1-D model. **Journal of Environmental Radioactivity**, Barking, v. 54, p. 99-108, 2001.

FRAENKEL, M. O.; SANTOS, R. C.; LOUREIRO, F. E. V. P.; MUNIZ, W. S. Jazida de urânio no Planalto de Poços de Caldas, Minas Gerais. In: Principais depósitos minerais brasileiros – Recursos minerais energéticos. Brasília DNPM, 1985.

GENITRON INSTRUMENTS. **Aquakit** - Accessory for radon in water measurement in combination with the radon monitor AlphaGUARD. Part 9. Frankfurt, Germany. 1997. 22 p.

GATZWEILER, R.; JAHN, S.; NEUBERT, G.; PAUL, M. Cover design for radioactive and AMD-producing mine waste in the Ronneburg area, Eastern Thuringia. **Wastes Management**, London, v. 21, p. 175-184, 2001.

GEORGE, A. C. Passive, integrated measurement of indoor radon using activated carbon. **Health Physics**. New York, v. 46, n. 4, p. 867-872, 1984.

GEORGE, A. C. State-of-the-art instruments for measuring radon/thoron and their progeny in dwellings – a review. **Health Physics**, New York, v. 70, n. 4, p. 451-463, 1996.

GEORGE, A. C. The present status of the radon program in the United States of America. **The Science of the Total Environment**, Amsterdam, v. 272, p 245-246, 2001.

HARLEY, J. H. Measurement of ^{222}Rn: A brief history. **Radiation Protection Dosimetry**, Ashford, v. 45, n. 1/4, p. 13-18, 1992.

HART, K. P.; LEVINS, D. M. **Radon emanation from Bem Lomond Tailings**. Lucas Heights: Research Establishment, Australian Atomic Energy Commission, 1983. (Report AACD-C/32).

HARTLEY, J. N.; FREEMAN, H. D. **Radon flux measurements on gardinier and royster phosphogypsum piles near Tampa and Mulberry, Florida**. Pacific Richland, WA: Northwest Laboratory, 1986. (USEPA/520/5--85-029).

INDÚSTRIAS NUCLEARES DO BRASIL S. A. Programa de descomissionamento da Mina e Bota Foras. Poços de Caldas: Complexo Industrial do Planalto de Poços de Caldas – CIPC, 1999. v. 1 e 7.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **International basic safety standards for protection against ionizing radiation and for the safety of radiation sources**. Vienna: IAEA, 1996. 316 p. (Safety Series, 115).

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Decommissioning of facilities for mining and milling of radioactive ores and closeout of residues**. Vienna: IAEA, 1994. 186 p. (Technical Reports Series, 362).

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Measurement and calculation of radon releases from uranium mill tailings.** Vienna: IAEA, 1992. 59 p. (Technical Reports Series, 333).

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **The environmental behavior of radium**. Vienna: IAEA, 1990. 599 p. (Technical Reports Series, 310).

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Recommendations of the International Commission on Radiological Protection**. Oxford: ICRP, 1990. 201 p. (ICRP Publication, 60).

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Protection against radon-222 at home and work**. Oxford: ICRP, 1993. 21 p. (ICRP Publication, 65).

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Basis for dosimetric quantities used in radiological protection**. Anex B of main recommendations. Oxford: ICRP, 2006. 72 p.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Limits for inhalation of radon daughters by workers**. Oxford: ICRP, 1981. 24 p. (ICRP Publication, 32).

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. **Radiation protection of workers in mines**. Stockholm: ICRP, 1993. 45 p. (ICRP Publication, 65).

ISKANDAR, D.; YAMAZAWA, T. I.; IIDA, T. Quantification of the dependency of radon emanation power on soil temperature. **Applied Radiation and Isotopes**, Oxford, v. 60, p. 971-973, 2004.

JENSEN, C. M.; OVERMYER, R. F.; MACBETH, P. J.; ROGERS, V. C. Emanating power and diffusion of radon through uranium mill tailings. In: SEMINAR ON MANAGEMENT, STABILIZATION AND ENVIRONMENTAL IMPACT OF URANIUM MILL TAILINGS, 1978, Albuquerque, NM. **Proceedings**. Paris: Nuclear Energy Agency, 1978. p. 75.

KOSLOWSKA, B.; HETMAN, A.; ZIPPER, W. Determination of ^{222}Rn in natural water samples from health resorts in the Sudety montains by the liquid scintillation technique. **Applied Radiation and Isotopes**, Oxford, v. 51, p. 475-480, 1999.

LEONI, G. L. M.; ALMEIDA, M. S. S.; FERNANDES, H. M. Computational modelling of final covers for uranium mill tailings impoundments. **Journal of Hazardous Materials**, Amsterdam, v. 110, p. 139-149, 2004.

LIBARDI, P. L. **Infiltração da água no solo: uma generalização**. 1973. 46 f. Dissertação (Mestrado em Energia Nuclear na Agricultura) – Escola Superior de Agricultura "Luiz de Queiroz", Universidade de São Paulo, Piracicaba, 1973.

LIBARDI, P. L. **Dinâmica da água no solo**. São Paulo: Edusp, 2005.cap. 3, p. 47-68.

MACACINI, J. F.; TADDEI, M. H. T.; SILVA, N. C.; CIPRIANI, M. Método para determinação da taxa de exalação de radônio com carvão ativado. In: REGIONAL CONGRESS ON RADIATION PROTECTION AND SAFETY, 5., 2001, Recife. **Proceedings**. Recife: Brazilian Radiation Protection Society, 2001.

MEGUMI, K.; MAMURO, T. Emanation and exhalation of radon and thoron gases from soil particles. **Journal of Geophysical Research**, Washington, v. 79, n. 23, p. 3357-3360, 1974.

MUCCIACITO, J. C. Conceitos e aplicações do carvão ativado. **Revista Meio Filtrante On Line**, Santo André, v. 5, n. 22, set/out. 2008. Disponível em: http://www.meiofiltrante.com.br. Acesso em: 01 jul. 2008.

NATIONAL RADIOLOGICAL PROTECTION BOARD – NRPB. Limitation of human exposure to radon in homes. **Documents of the NRPB**, Cambridge, v. 1, n. 1, p. 1-32, 1990.

NEMAN, R. S. **Medida separada de Radônio-222 e de seus filhos no ar**: monitoração da cidade de Poços de Caldas-MG e comparação de atividades envolvendo duas outras técnicas de medida de Rn-222 no ar. 2005. 146 f. Tese (Doutorado) - Instituto de Fisica Gleb Wataghin, Universidade Estadual de Campinas, Campinas, 2005.

OLIVER, M. A.; KHAYRAT, A. L. A geostatistical investigation of the spatial variation of radon in soil. **Computers and Geosciences**, Elmsford, v. 27, p. 939-957, 2001.

REINERT, D. J.; REICHERT, J. M. Propriedades físicas do solo. Universidade de Santa Maria: UFSM, 2006. 18 p. Disponível em: http://w3.ufsm.br/msrs/Textos%20download/Apresentacoes%20aulas%20palestras/Propriedades%20fisicas%20do%20solo%20-%20Reichert_Reinert.pdf . Acesso em: 30 jun. 2008.

ROGERS, V. C.; NIELSON, K. K. Multifase radon generation and transport in porous materials. **Health Physics**, New York, v. 60, n. 6, p. 807-815, 1991.

PEREIRA, E. B. **Caracterização da produção de Rn-222 no Campo do Cercado C-09 Poços de Caldas, MG**. 1977. 120 f. Dissertação (Mestrado) – Instituto Astronômico e Geofísico – Universidade de São Paulo, São Paulo, 1977.

POJER, P.M.; PEGGIE J.R.; O'BRIEN R.S.; SOLOMON S.B.; WISE K.N. Performance of a diffusion barrier charcoal adsorption ^{222}Rn monitor under conditions of varying humidity and temperature. **Health Physics**, New York, v. 58, n. 1, p. 13-19, 1990.

SHAFI-UR-REHMAN, M.; RAHMAN, S. Studying ^{222}Rn exhalation rate from soil and sand samples using CR-39 detector. **Radiation Measurements**, Oxford, v. 41, n. 6, p. 708-713, 2006.

SASAKI, T.; Gunji, Y.; Okuda, T. Mathematical modeling of radon emanation. **Journal of Nuclear Science and Technology**, Tokyo, v. 41, n. 2, p. 142-151, 2004.

SOARES, P.S.M.; TRINDADE, R.B.E. Sistemas passivos abióticos para o tratamento de drenagens ácidas de mina (DAM). In: SEMINÁRIO BRASIL CANADÁ DE RECUPERAÇÃO AMBIENTAL DE ÁREAS MINERADAS. 12., 2003, Florianópolis. Rio de Janeiro: CETEM/SBG, 2003. v. 1, p. 273-290

SOUZA, V.P.; BORMA, L.D.S.; MENDONÇA, R.M.G. Projeto de coberturas secas para controle da drenagem ácida em depósitos geradores de acidez. In: SEMINÁRIO BRASIL CANADÁ DE RECUPERAÇÃO AMBIENTAL DE ÁREAS MINERADAS. 12., 2003, Florianópolis. Rio de Janeiro: CETEM/SBG, 2003. v. 1, p. 253-271.

SPEHR, W.; JOHANSTON, A. The measurement of radon emanation rates using active charcoal. **Radiation Protection in Australia**, Victoria, v. 1, n. 3, p. 1983.

STEPHENSON, R. **Introduction to nuclear engineering**. 2. ed. . New York: McGraw-Hill Book Company, 1958. cap. 1, p. 1-49.

STRANDEN, E.; KOLSTAD, A. K.; LIND, B. The influence of moisture and temperature on radon exhalation. **Radiation Protection Dosimetry**, Ashford, v. 7, p. 55-58, 2001.

STRONG, K. P.; LEVINS, D. M. Dynamic adsorption of radon on activated carbon. In: DOE NUCLEAR AIR CLEANING CONFERENCE, 15., 1978, Boston. **Proceedings…** Washington: DOE, 1978. p. 627-639.

SUN, K.; GUO, Q.; CHENG, J. The effect of some soil characteristics on soil radon concentration and radon exhalation from soil surface. **Journal of Nuclear Science and Technology**, Tokyo, v. 41, n. 11, p. 1113-1117, 2004.

SUN, K.; GUO, Q.; ZHUO, W. Feasibility for mapping radon exhalation rate from soil in China. **Journal of Nuclear Science and Technology**, Tokyo, v. 41, n. 1, p. 86-90, 2004.

TADDEI, M. H. T.; MACACINI, J. F.; CIPRIANI, M.; SILVA, N. C. Determinação da taxa de exalação de Rn-222 em bota fora de mina de urânio. In: REGIONAL CONGRESS ON RADIATION PROTECTION AND SAFETY, 5., 2001, Recife. **Proceedings…** Recife: IAEA/IRPA, 2001. 1 CD-ROM.

UNDERHILL, D. W. Basic theory for the diffusive sampling of radon. **Health Physics**, New York, v. 65, n. 1, p. 17-24, 1993.

UNITED NATIONS SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATION. **Sources and effects of ionizing radiation**. New York: UNSCEAR, 2000. 652p.

UNITED STATES DEPARTMENT OF ENERGY. **Laboratory research on tailings stabilization methods and their effectiveness in radiation containment**. Grand Junction, Colorado, 1978. 80 p. (Contract number E(05-1)-1658).

UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY - USEPA. **Method 115** – Monitoring for radon-222 emissions. Disponível em: http://www.epa.gov/ttn/emc/prongate/m-115.pdf. Acesso em: 31 abr. 2008a.

UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY (USEPA). **Title 40: Protection of environment**. Part 61 - National emission standards for hazardous air pollutants. Sub-part T – National emission standards for radon emissions from the disposal of uranium mil tailings. Disponível em: http://ecfr.gpoaccess.gov/cgi/t/text/text-idx?c=ecfr;sid=20d7bbe0fc2d22d0556c2f50257358bf;rgn=div6;view=text;node=40%3A8.0.1.1.1.20;idno=40;cc=ecfr. > Acesso em: 31 abr. 2008b.

UNITED STATES NUCLEAR REGULATORY COMMISSION - USNRC. **Calculation of radon flux attenuation by earthen uranium mill tailings covers**. Regulatory

guide 3.64, 1989. Disponível em: http://www.osti.gov/bridge/servlets/purl/5787888-pLSd7K/5787888.PDF. Acesso em: 08 jul. 2008.

VALENCIA, C. A. V. **Aplicação da adsorção de carvão ativado e outros materiais carbonosos no tratamento de águas contaminadas por pesticidas de uso agrícola**. 2007. 120 p. Dissertação (Mestrado em Engenharia Metalúrgica e de Materiais) - Pontifícia Universidade Católica do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2007.

VARGAS, M. **Introdução à mecânica dos solos**. São Paulo: McCraw-Hill do Brasil, 1978. cap. 1 p. 3-45.

APENDICE

Apêndice A – Malhas de amostragem de ^{222}Rn nas asas norte e oeste da bacia de rejeitos radioativos da UTM – Caldas

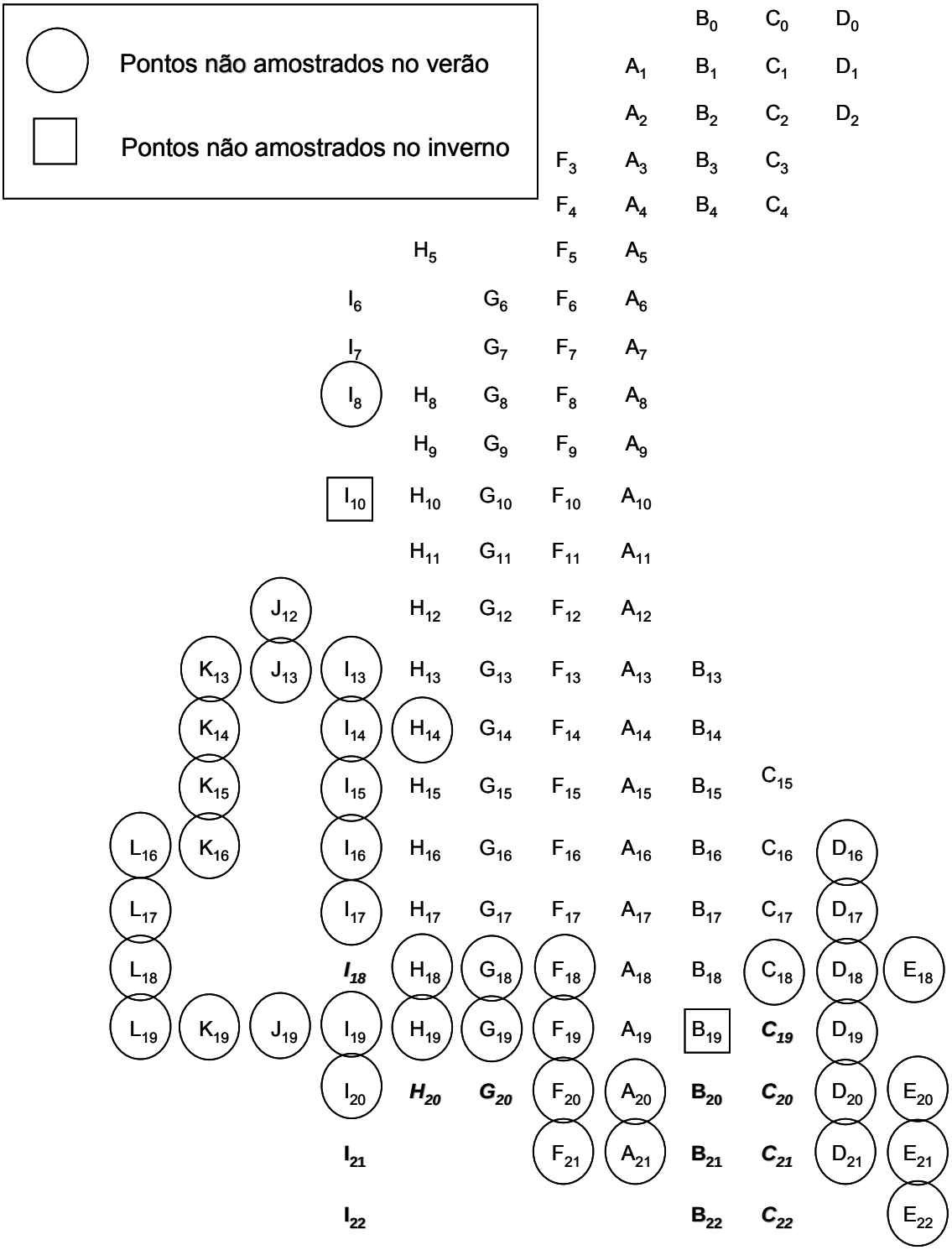

Figura 1 – Diagrama dos pontos de amostragem da Asa Norte da bacia de rejeitos do CIC.

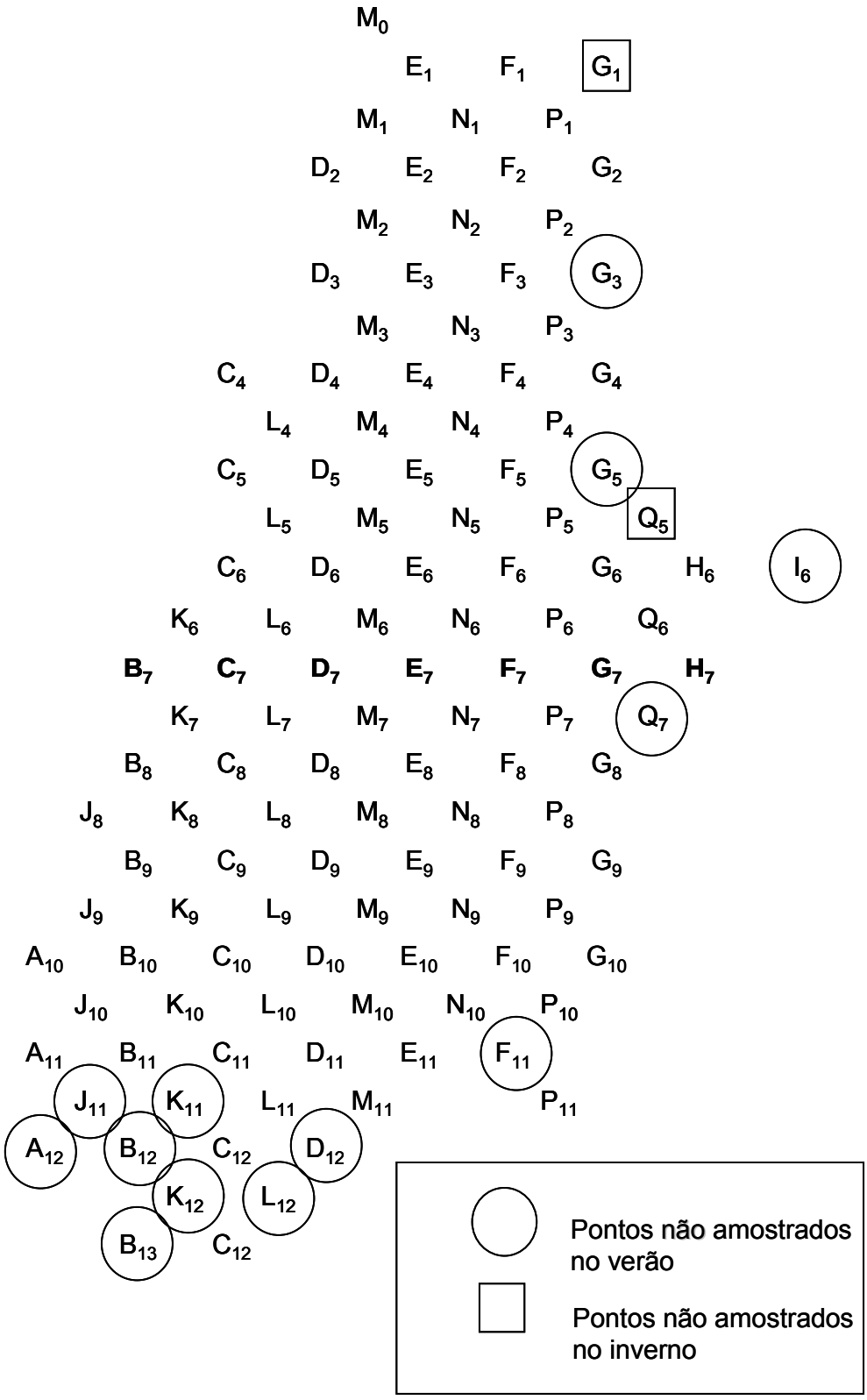

Figura 2 – Diagrama dos pontos de amostragem da Asa Norte da bacia de rejeitos do CIC..

APÊNDICE B – Resultados das amostragens de taxa de exalação de ^{222}Rn realizadas com coletor 607 nos pontos das malhas apresentadas no Apêndice A

Tabela 1 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa norte no inverno (ni) de 2007 (continua)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
1	A1 ni	0,99	62	46	0,01	3,55	48,8
2	A2 ni	0,99	550	96	0,17	3,50	14,3
3	A3 ni	1,01	9624	230	2,92	3,15	13,0
4	A4 ni	1,00	506	83	0,16	3,20	14,5
5	A5 ni	1,00	5560	194	1,70	6,95	11,0
6	A6 ni	1,00	4356	167	1,34	5,05	11,6
7	A7 ni	1,01	3676	142	1,12	3,85	12,3
8	A8 ni	1,01	2805	142	0,86	4,30	12,1
9	A9 ni	1,00	1944	103	0,60	4,30	12,1
10	A10 ni	0,97	1379	105	0,44	4,70	12,1
11	A11 ni	0,97	1503	99	0,48	4,35	12,2
12	A12 ni	0,97	1508	104	0,48	5,20	11,8
13	A13 ni	0,97	6846	217	2,18	4,30	11,9
14	A14 ni	0,98	4774	177	1,50	4,60	11,8
15	A15 ni	0,97	1251	100	0,40	4,05	12,6
16	A16 ni	0,97	5950	187	1,89	4,60	11,7
17	A17 ni	1,01	410	80	0,12	4,95	13,7
18	A18 ni	1,01	397	77	0,12	5,10	13,6
19	A19 ni	1,01	372	80	0,11	4,25	14,3
20	A20 ni	1,01	329	68	0,10	4,55	14,0
21	A21 ni	1,01	352	72	0,11	5,50	13,6
22	B0 ni	0,99	98	66	0,03	4,20	37,4
23	B1 ni	0,99	16	68	0,01	3,75	15,0
24	B2 ni	0,99	7167	202	2,24	3,70	12,3
25	B3 ni	1,01	2670	134	0,82	3,10	13,3
26	B4 ni	1,00	4159	169	1,30	4,90	11,7
27	B13 ni	0,97	4970	192	1,59	4,20	12,0
28	B14 ni	0,98	7620	227	2,40	4,45	11,8
29	B15 ni	0,97	4774	184	1,52	4,55	11,8
30	B16 ni	0,97	2132	131	0,68	4,55	12,0
31	B17 ni	1,01	1738	115	0,53	5,55	11,7
32	B18 ni	1,03	256	75	0,08	5,15	15,5
33	C0 ni	1,00	87	53	0,03	3,70	30,7
34	C1 ni	0,99	43	61	0,01	3,25	42,2
35	C2 ni	1,00	1067	99	0,33	4,10	12,7
36	C3 ni	1,00	687	86	0,22	3,85	13,3
37	C4 ni	0,99	10062	251	3,16	2,75	13,7
38	C15 ni	0,97	2930	141	0,94	4,15	12,2
39	C16 ni	1,01	2931	150	0,89	5,25	11,6
40	C17 ni	1,01	1582	103	0,48	5,10	11,8
41	C18 ni	1,01	176	82	0,05	4,70	21,4
42	D0 ni	0,99	82	57	0,03	3,55	40,6
43	D1 ni	0,99	724	95	0,23	4,00	13,2
44	D2 ni	1,00	325	79	0,10	4,45	14,7
45	D16 ni	1,01	432	77	0,13	13,55	12,5
46	D17 ni	1,01	536	83	0,16	5,50	12,8
47	D18 ni	1,01	593	82	0,18	4,95	12,8
48	D19 ni	1,00	253	74	0,08	4,35	15,8
49	D20 ni	1,01	264	76	0,08	5,25	15,4
50	D21 ni	1,01	601	79	0,19	4,35	13,0

Tabela 1 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa norte no inverno (ni) de 2007 (continuação)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
51	E18 ni	1,00	506	79	0,16	5,60	12,8
52	E20 ni	1,00	1198	99	0,37	16,60	11,1
53	E21 ni	1,01	744	89	0,23	5,45	12,4
54	E22 ni	1,01	1539	107	0,48	5,00	11,9
55	F3 ni	1,01	1641	112	0,51	3,95	12,5
56	F4 ni	1,00	4502	173	1,42	3,95	12,2
57	F5 ni	1,01	4012	165	1,26	5,00	11,6
58	F6 ni	1,00	4934	176	1,55	4,60	11,8
59	F7 ni	1,01	1033	106	0,32	3,85	13,0
60	F8 ni	1,00	1676	120	0,53	3,45	13,0
61	F9 ni	1,01	1354	115	0,43	3,85	12,8
62	F10 ni	0,97	17842	334	5,72	4,60	11,6
63	F11 ni	0,97	16662	326	5,35	3,80	12,2
64	F12 ni	0,97	2217	132	0,72	3,80	12,6
65	F13 ni	0,97	1614	112	0,52	4,75	12,0
66	F14 ni	0,98	12837	287	4,10	4,90	11,5
67	F15 ni	0,97	4948	183	1,59	4,60	11,8
68	F16 ni	0,97	3994	170	1,29	3,95	12,3
69	F17 ni	1,01	1128	105	0,35	4,55	12,4
70	F18 ni	1,01	1169	108	0,36	5,20	12,1
71	F19 ni	1,01	286	68	0,09	4,90	14,4
72	F20 ni	1,01	576	82	0,18	4,60	13,0
73	F21 ni	1,01	308	77	0,10	4,90	14,7
74	G6 ni	1,00	8913	232	2,87	4,85	11,5
75	G7 ni	1,01	863	87	0,27	3,80	13,0
76	G8 ni	1,01	1354	114	0,43	4,40	12,4
77	G9 ni	1,00	168	64	0,05	4,15	18,3
78	G10 ni	1,01	15144	310	4,82	3,35	12,7
79	G11 ni	0,97	4074	164	1,31	4,30	12,0
80	G12 ni	0,97	10273	254	3,32	4,45	11,7
81	G13 ni	0,98	10635	262	3,42	4,30	11,8
82	G14 ni	0,97	8667	234	2,80	4,55	11,7
83	G15 ni	0,97	9685	248	3,51	4,40	11,8
84	G16 ni	0,97	10453	289	3,82	5,00	11,5
85	G17 ni	1,01	1458	113	0,46	5,20	11,9
86	G18 ni	1,01	1438	115	0,45	5,05	12,0
87	G19 ni	0,99	491	79	0,17	4,80	13,2
88	H5 ni	1,00	1361	112	0,44	4,80	12,1
89	H8 ni	1,00	1405	106	0,44	4,95	12,0
90	H9 ni	1,00	24251	389	7,68	4,30	11,7
91	H10 ni	1,00	38034	500	12,06	4,30	11,7
92	H11 ni	0,97	12407	287	4,52	4,55	11,7
93	H12 ni	0,97	7595	223	2,77	4,25	11,9
94	H13 ni	0,97	4362	173	1,60	3,90	12,3
95	H14 ni	0,96	1271	102	0,47	4,05	12,6
96	H15 ni	0,97	1059	101	0,39	4,65	12,4
97	H16 ni	0,96	3655	155	1,35	4,75	11,7
98	H17 ni	1,01	4258	165	1,50	5,50	11,4
99	H18 ni	1,01	1512	109	0,53	5,20	11,9
100	H19 ni	0,99	1094	102	0,39	4,25	12,6

Tabela 1 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa norte no inverno (ni) de 2007 (conclusão)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
101	I6 ni	1,00	2120	117	0,67	4,30	12,1
102	I7 ni	1,00	1901	120	0,61	4,00	12,4
103	I8 ni	1,01	1484	108	0,46	3,50	13,0
104	I13 ni	0,97	1575	115	0,58	4,75	12,1
105	I14 ni	0,96	795	100	0,29	4,95	12,6
106	I15 ni	0,97	5695	190	2,11	4,90	11,6
107	I16 ni	0,97	965	100	0,36	5,15	12,3
108	I17 ni	1,01	272	78	0,10	4,40	15,7
109	I19 ni	0,99	3217	152	1,15	14,50	10,7
110	I20 ni	0,99	2609	141	0,94	5,50	11,6
111	J12 ni	0,98	1267	99	0,46	4,50	12,3
112	J13 ni	0,98	2905	142	1,05	4,70	11,8
113	J19 ni	0,99	945	94	0,34	5,15	12,2
114	K13 ni	0,98	352	71	0,13	4,25	14,1
115	K14 ni	0,98	1544	98	0,56	5,75	11,6
116	K15 ni	0,99	5582	179	2,01	4,60	11,7
117	K16 ni	0,99	2213	143	0,80	4,80	11,9
118	K19 ni	0,98	1643	114	0,60	5,55	11,7
119	L16 ni	0,98	675	97	0,25	4,65	13,0
120	L17 ni	0,98	824	102	0,30	2,50	15,3
121	L18 ni	0,98	3203	156	1,17	5,15	11,6
122	L19 ni	0,98	714	75	0,26	4,80	12,4

Tabela 2 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa norte no verão (nv) de 2007 (continua)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
1	A1 nv	1,01	129	71	0,04	6,60	25,7
2	A2 nv	0,97	575	84	0,18	6,15	12,5
3	A3 nv	1,01	7422	230	2,27	6,05	11,2
4	A4 nv	1,00	3778	163	1,17	5,90	11,3
5	A5 nv	0,99	4807	187	1,50	6,15	11,2
6	A6 nv	1,00	5092	195	1,58	6,70	11,1
7	A7 nv	0,99	1737	121	0,54	6,70	11,4
8	A8 nv	0,99	2428	139	0,77	8,10	11,1
9	A9 nv	0,99	2599	148	0,82	6,10	11,4
10	A10 nv	0,98	1667	130	0,53	7,45	11,4
11	A11 nv	0,97	10121	267	3,26	6,75	11,0
12	A12 nv	0,96	917	100	0,34	6,10	12,0
13	A13 nv	0,94	1400	107	0,52	6,20	11,6
14	A14 nv	0,92	2722	139	1,04	6,60	11,3
15	A15 nv	0,98	559	112	0,20	4,45	14,0
16	A16 nv	0,98	2886	171	1,05	4,90	11,8
17	A17 nv	0,98	1793	159	0,65	5,25	12,0
18	A18 nv	0,98	1001	129	0,36	4,75	12,7
19	A19 nv	0,98	305	117	0,11	5,35	18,0
20	B0 nv	1,01	145	66	0,05	5,00	20,8
21	B1 nv	1,01	75	50	0,03	6,10	36,3
22	B2 nv	1,01	5311	197	1,86	5,75	11,3
23	B3 nv	1,01	117	66	0,04	6,35	26,6

Tabela 2 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa norte no verão (nv) de 2007 (continuação)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo($Bqm^{-2}s^{-1}$)	m H_2O (g)	Incerteza (%)
24	B4 nv	1,00	2435	138	0,86	6,10	11,4
25	B13 nv	0,92	204	88	0,08	6,10	19,6
26	B14 nv	0,92	1471	124	0,56	5,95	11,8
27	B15 nv	0,98	1437	145	0,53	4,80	12,4
28	B16 nv	0,98	967	114	0,35	4,15	12,9
29	B17 nv	0,98	320	96	0,12	4,45	16,0
30	B18 nv	0,98	307	88	0,11	3,55	16,2
31	B19 nv	0,98	393	90	0,14	3,20	15,5
32	C0 nv	1,01	95	67	0,03	6,60	41,7
33	C1 nv	1,01	209	71	0,07	6,00	16,6
34	C2 nv	1,00	115	83	0,04	6,60	44,5
35	C3 nv	1,00	179	76	0,06	6,15	19,3
36	C4 nv	1,00	2728	136	0,97	6,10	11,3
37	C15 nv	0,97	1350	132	0,50	4,85	12,3
38	C16 nv	0,98	2554	166	0,94	4,85	11,9
39	C17 nv	0,98	158	99	0,06	4,80	32,0
40	D0 nv	1,00	66	50	0,02	5,95	51,9
41	D1 nv	1,00	123	70	0,04	6,00	27,0
42	D2 nv	0,99	41	70	0,01	5,00	28,4
43	F3 nv	0,99	1416	121	0,51	5,50	11,9
44	F4 nv	0,99	4398	173	1,59	6,10	11,2
45	F5 nv	0,99	2541	140	0,92	6,30	11,4
46	F6 nv	0,99	1317	112	0,48	6,65	11,6
47	F7 nv	0,99	3057	155	1,11	6,00	11,4
48	F8 nv	0,98	1134	103	0,42	4,45	12,4
49	F9 nv	0,98	450	79	0,17	5,30	13,2
50	F10 nv	0,97	2311	134	0,85	6,20	11,4
51	F11 nv	0,96	13626	294	5,11	6,05	11,1
52	F12 nv	0,91	3853	169	1,52	6,40	11,2
53	F13 nv	0,95	2889	140	1,11	6,40	11,3
54	F14 nv	0,92	2637	141	1,04	6,65	11,3
55	F15 nv	0,97	3275	184	1,21	4,90	11,8
56	F16 nv	0,98	4293	214	1,58	4,70	11,8
57	F17 nv	0,98	445	92	0,16	5,50	13,7
58	G6 nv	0,98	3867	159	1,44	6,30	11,2
59	G7 nv	0,98	975	105	0,36	6,10	12,0
60	G8 nv	0,98	5547	188	2,07	5,70	11,3
61	G9 nv	0,97	4494	171	1,69	6,30	11,2
62	G10 nv	0,97	4237	175	1,60	6,65	11,1
63	G11 nv	0,96	1867	114	0,71	6,45	11,4
64	G12 nv	0,92	10642	268	4,24	6,75	10,9
65	G13 nv	0,95	18472	352	7,15	5,90	11,1
66	G14 nv	0,92	1585	121	0,63	6,00	11,7
67	G15 nv	0,98	3515	186	1,30	4,15	12,2
68	G16 nv	0,98	2968	184	1,10	4,90	11,9
69	G17 nv	0,97	261	107	0,10	4,80	19,1
70	H5 nv	0,97	962	110	0,37	6,25	12,1
71	H8 nv	0,97	1321	111	0,50	7,50	11,5
72	H9 nv	0,96	10919	276	4,22	6,75	11,0
73	H10 nv	0,95	4506	185	1,75	6,50	11,2

Tabela 2 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa norte no verão (nv) de 2007 (conclusão)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
74	H11 nv	0,91	3146	144	1,29	7,20	11,1
75	H12 nv	0,96	9261	263	3,58	6,20	11,1
76	H13 nv	0,95	9919	266	3,88	5,95	11,1
77	H15 nv	0,98	2380	167	0,89	3,90	12,6
78	H16 nv	0,97	539	103	0,20	4,15	14,0
79	H17 nv	0,97	1031	125	0,38	5,50	12,4
80	I6 nv	0,96	1693	120	0,66	5,95	11,6
81	I7 nv	0,96	5060	199	1,96	6,85	11,1
82	I10 nv	0,93	1200	110	0,48	6,30	11,8

Tabela 3 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa oeste no inverno (oi) de 2006 (continua)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
1	A10 oi	1,90	11726	321	1,57	6,85	11,0
2	A11 oi	1,91	10151	259	1,36	7,00	10,9
3	A12 oi	0,91	3533	188	0,89	4,05	12,3
4	B7 oi	1,02	5777	200	0,88	2,60	14,2
5	B8 oi	1,03	9525	257	2,18	3,00	13,3
6	B9 oi	1,90	16775	370	2,24	6,45	11,0
7	B10 oi	1,91	12902	288	1,74	6,20	11,0
8	B11 oi	0,92	7124	239	1,78	4,55	11,8
9	B12 oi	0,93	2327	134	0,58	4,45	12,1
10	B13 oi	0,93	1952	124	0,49	4,45	12,1
11	C4 oi	1,00	6711	233	1,06	2,35	14,9
12	C5 oi	0,99	2552	158	0,41	3,30	13,1
13	C6 oi	1,01	14978	330	2,34	3,50	12,5
14	C7 oi	1,02	2989	183	0,45	3,50	12,9
15	C8 oi	1,02	11313	308	2,60	3,85	12,2
16	C9 oi	1,91	14429	307	1,94	6,90	10,9
17	C10 oi	1,91	13458	297	1,82	5,65	11,2
18	C11 oi	0,92	4093	179	1,02	4,25	12,0
19	C12 oi	0,93	1428	122	0,36	4,20	12,5
20	C13 oi	0,93	756	101	0,19	4,45	13,0
21	D2 oi	0,99	15410	323	2,41	2,80	13,6
22	D3 oi	1,00	14993	310	2,34	3,65	12,3
23	D4 oi	1,00	765	115	0,12	3,70	13,7
24	D5 oi	0,99	5538	201	0,88	3,35	12,8
25	D6 oi	1,01	13429	306	2,09	3,75	12,3
26	D7 oi	1,02	14029	316	2,12	2,70	13,8
27	D8 oi	1,02	3094	175	0,71	3,30	13,1
28	D9 oi	1,91	15620	314	2,10	6,80	10,9
29	D10 oi	0,94	1394	132	0,35	4,40	12,5
30	D11 oi	0,92	797	103	0,20	4,45	12,9
31	D12 oi	0,93	560	95	0,14	4,40	13,5
32	E1 oi	1,00	7126	239	1,10	3,35	12,8
33	E2 oi	1,00	13526	313	2,09	3,45	12,6
34	E3 oi	1,01	8220	254	1,27	3,40	12,7
35	E4 oi	1,00	5792	214	0,92	3,85	12,3

Tabela 3 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa oeste no inverno (oi) de 2006 (continuação)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
36	E5 oi	1,00	29326	446	4,63	3,40	12,6
37	E6 oi	1,00	2731	159	0,43	3,75	12,6
38	E7 oi	1,03	3907	182	0,89	3,90	12,3
39	E8 oi	1,01	6241	212	0,96	3,00	13,3
40	E9 oi	1,91	1473	103	0,20	7,10	11,4
41	E10 oi	0,93	2552	156	0,64	2,45	14,8
42	E11 oi	0,93	2031	137	0,51	4,15	12,4
43	F1 oi	1,00	25772	422	4,02	3,75	12,2
44	F2 oi	1,00	18858	122	2,96	3,05	13,0
45	F3 oi	1,00	2800	158	0,44	3,30	13,1
46	F4 oi	1,01	2978	162	0,46	3,80	12,5
47	F5 oi	1,00	2810	154	0,44	3,35	13,0
48	F6 oi	1,00	3839	190	0,60	4,10	12,2
49	F7 oi	0,99	6232	218	0,97	3,65	12,5
50	F8 oi	1,01	5130	204	0,79	3,20	13,1
51	F9 oi	1,91	2825	164	0,38	5,70	11,5
52	F10 oi	0,93	2130	123	0,53	3,60	12,7
53	F11 oi	0,93	2472	139	0,62	4,30	12,1
54	G2 oi	1,00	13548	310	2,13	3,75	12,3
55	G3 oi	0,99	2136	136	0,34	3,55	12,8
56	G4 oi	1,01	6889	243	1,07	3,50	12,6
57	G5 oi	1,00	5721	205	0,90	3,50	12,6
58	G6 oi	1,00	8617	261	1,34	3,45	12,6
59	G7 oi	0,99	888	110	0,14	3,70	13,4
60	G8 oi	1,00	6384	227	1,48	3,65	12,5
61	G9 oi	1,91	1244	131	0,17	6,95	11,8
62	G10 oi	0,93	725	94	0,18	3,80	13,4
63	H6 oi	1,00	1814	154	0,28	4,35	12,4
64	H7 oi	0,99	8414	244	1,31	3,95	12,1
65	I6 oi	0,99	10372	276	1,62	3,50	12,6
66	J8 oi	0,87	10341	273	2,80	3,85	12,2
67	J9 oi	0,87	5449	210	1,47	2,50	14,5
68	J10 oi	0,92	7974	242	2,03	4,10	12,0
69	J11 oi	0,89	7447	232	1,92	4,30	11,9
70	K6 oi	0,96	7640	309	1,23	3,50	12,7
71	K7 oi	0,96	7798	326	1,26	5,60	11,4
72	K8 oi	0,96	11788	367	1,90	4,25	11,9
73	K9 oi	0,96	9790	355	1,58	4,30	11,9
74	K10 oi	0,96	8835	304	1,42	3,20	13,0
75	K11 oi	0,91	2469	139	0,60	4,15	12,2
76	K12 oi	0,89	1792	124	0,47	4,40	12,2
77	L4 oi	0,94	3542	159	0,87	3,10	13,3
78	L5 oi	0,94	8133	256	2,00	3,60	12,5
79	L6 oi	0,94	4011	180	0,99	3,85	12,4
80	L7 oi	0,94	1720	135	0,42	4,15	12,5
81	L8 oi	0,94	7653	227	1,88	3,40	12,7
82	L9 oi	0,94	7181	225	1,76	2,95	13,4
83	L10 oi	0,94	3199	155	0,78	3,20	13,1
84	L11 oi	0,94	421	97	0,10	3,55	15,1

Tabela 3 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa oeste no inverno (oi) de 2006 (conclusão)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
85	L12 oi	0,94	1398	118	0,34	3,80	12,8
86	M0 oi	0,97	10078	361	1,63	3,00	13,3
87	M1 oi	0,94	9016	260	2,22	3,35	12,8
88	M2 oi	0,94	10315	279	2,54	3,55	12,5
89	M3 oi	0,94	3648	189	0,90	4,00	12,3
90	M4 oi	0,94	7832	237	1,93	3,75	12,3
91	M5 oi	0,94	674	99	0,17	3,50	13,9
92	M6 oi	0,94	16513	362	4,08	3,15	13,0
93	M7 oi	0,94	2360	153	0,58	3,35	13,1
94	M8 oi	0,94	5679	201	1,41	2,65	14,1
95	M9 oi	0,94	6846	244	1,70	2,45	14,6
96	M10 oi	0,94	503	80	0,12	3,60	13,9
97	M11 oi	0,99	5229	270	0,81	4,30	12,1
98	N1 oi	1,03	1114	118	0,29	4,05	12,9
99	N2 oi	1,03	1920	157	0,50	4,40	12,4
100	N3 oi	1,04	3750	206	0,97	4,70	11,9
101	N4 oi	1,04	6862	238	1,78	4,10	12,1
102	N5 oi	1,04	5731	212	1,49	3,55	12,6
103	N6 oi	1,04	2780	184	0,72	4,10	12,4
104	N7 oi	1,04	768	117	0,20	4,40	13,2
105	N8 oi	1,04	3166	189	0,83	3,65	12,7
106	N9 oi	1,04	4887	220	1,28	3,95	12,3
107	N10 oi	1,04	1282	123	0,34	3,60	13,1
108	P1 oi	1,04	4665	227	1,23	4,20	12,1
109	P2 oi	1,04	7135	255	1,87	4,25	12,0
110	P3 oi	1,04	14783	358	3,88	4,80	11,5
111	P4 oi	1,04	2596	164	0,68	4,05	12,4
112	P5 oi	1,04	13121	335	3,44	4,75	11,6
113	P6 oi	1,05	5666	234	1,49	4,55	11,8
114	P7 oi	1,05	38921	560	10,22	4,95	11,4
115	P8 oi	1,05	1872	131	0,49	5,60	11,7
116	P9 oi	1,05	1195	133	0,31	4,25	12,8
117	P10 oi	1,05	713	127	0,19	4,05	13,8
118	Q6 oi	0,96	2533	239	0,41	4,00	12,8
119	Q7 oi	0,98	8527	339	1,38	4,65	11,8

Tabela 4 – Resultados de taxas de exalação medidas na asa oeste no verão (ov) de 2007 (continua)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
1	A10 ov	1,03	3938	163	1,21	5,90	11,3
2	A11 ov	1,03	1289	123	0,40	7,45	11,6
3	B7 ov	1,06	13369	308	4,04	6,80	10,9
4	B8 ov	1,05	2761	162	0,84	6,60	11,3
5	B9 ov	1,04	5817	218	1,79	6,55	11,1
6	B10 ov	1,03	4281	181	1,33	6,20	11,2
7	B11 ov	1,02	5744	215	1,81	6,80	11,1
8	C4 ov	1,16	426	89	0,13	6,55	13,5
9	C5 ov	1,15	1159	110	0,36	6,30	11,8
10	C6 ov	1,03	7485	230	2,60	5,85	11,2

Tabela 4 – Resultados de taxas de exalação obtidas na asa oeste no verão (ov) de 2007 (continuação)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo($Bqm^{-2}s^{-1}$)	m H_2O (g)	Incerteza (%)
11	C7 ov	1,03	2984	141	1,04	6,45	11,2
12	C8 ov	1,03	6586	211	2,28	6,35	11,1
13	C9 ov	1,02	4636	185	1,63	6,45	11,2
14	C10 ov	1,02	14778	316	5,22	5,08	11,4
15	C11 ov	1,01	387	83	0,14	7,35	13,5
16	C12 ov	1,01	196	67	0,10	6,95	16,5
17	C13 ov	1,04	300	68	0,16	7,35	13,7
18	D2 ov	1,16	3937	162	1,19	7,20	11,0
19	D3 ov	1,10	5917	209	1,89	6,90	11,0
20	D4 ov	1,10	823	98	0,26	6,50	12,1
21	D5 ov	1,09	5073	188	1,64	6,40	11,1
22	D6 ov	1,09	3762	168	1,22	8,15	11,0
23	D7 ov	1,09	2831	158	0,92	7,50	11,2
24	D8 ov	1,04	7509	224	2,57	6,55	11,0
25	D9 ov	1,08	11005	281	3,62	7,00	10,9
26	D10 ov	1,07	7509	224	2,49	6,85	11,0
27	D11 ov	1,07	3281	157	1,09	7,40	11,1
28	E1 ov	1,13	4180	173	1,35	7,20	11,0
29	E2 ov	1,13	3716	165	1,20	7,50	11,0
30	E3 ov	1,13	8011	237	2,60	8,80	10,7
31	E4 ov	1,13	34306	492	11,15	7,40	10,7
32	E5 ov	1,13	2500	144	0,81	7,65	11,2
33	E6 ov	1,13	4711	181	1,54	4,55	11,8
34	E7 ov	1,13	1616	127	0,54	7,85	11,4
35	E8 ov	1,13	5053	179	1,68	7,55	10,9
36	E9 ov	1,13	1607	130	0,53	8,00	11,4
37	E10 ov	1,12	3956	159	1,32	8,10	10,9
38	E11 ov	1,12	423	92	0,14	8,35	13,4
39	F1 ov	1,09	2526	147	0,83	8,35	11,1
40	F2 ov	1,00	14099	311	5,00	7,45	10,8
41	F3 ov	1,09	1626	162	0,54	7,80	11,7
42	F4 ov	1,09	8156	241	2,68	7,20	10,9
43	F5 ov	1,09	26194	424	8,59	7,15	10,8
44	F6 ov	1,10	30215	461	9,89	7,40	10,7
45	F7 ov	1,10	1173	100	0,38	7,20	11,5
46	F8 ov	1,10	4933	193	1,61	7,40	11,0
47	F9 ov	1,11	7952	239	2,59	6,70	11,0
48	F10 ov	1,10	7678	230	2,50	7,85	10,8
49	G1 ov	1,06	5198	187	1,69	7,00	11,0
50	G2 ov	1,06	9556	265	3,11	7,05	10,9
51	G4 ov	1,06	369	75	0,12	6,30	13,4
52	G6 ov	1,05	14746	322	4,85	6,55	11,0
53	G7 ov	1,06	8616	239	2,82	6,80	11,0
54	G8 ov	1,06	987	93	0,33	6,60	11,8
55	G9 ov	1,06	12311	292	4,12	6,65	11,0
56	G10 ov	1,06	219	67	0,07	-25,50	15,1
57	H6 ov	1,06	10912	274	3,69	6,75	10,9
58	H7 ov	1,06	171	83	0,06	6,10	22,0
59	I6 ov	1,06	4070	181	1,99	6,65	11,2
60	J8 ov	1,01	11356	283	3,57	6,40	11,0

Tabela 4 – Resultados das amostras coletadas no verão de 2007 na asa oeste (conclusão)

N	amostra	tf-to (d)	contagem	incerteza	Fluxo(Bq m^{-2} s^{-1})	m H_2O (g)	Incerteza (%)
61	J9 ov	1,04	10649	264	3,25	6,30	11,0
62	J10 ov	1,03	34675	492	10,75	6,65	10,9
63	J11 ov	1,02	504	97	0,16	6,25	13,3
64	K6 ov	1,03	10219	263	3,21	6,20	11,1
65	K7 ov	1,04	5798	214	1,80	6,85	11,1
66	K8 ov	1,03	7051	226	2,21	6,20	11,1
67	k9 ov	1,03	4881	186	1,54	5,80	11,3
68	k10 ov	1,02	7758	229	2,46	6,35	11,1
69	L4 ov	1,03	5166	193	1,18	6,20	11,2
70	L5 ov	1,03	8230	235	1,89	6,00	11,1
71	L6 ov	1,03	11637	274	2,68	6,15	11,1
72	L7 ov	1,02	2648	146	0,61	5,95	11,4
73	L8 ov	1,02	3825	170	0,89	6,80	11,1
74	L9 ov	1,03	27920	429	6,46	7,15	10,8
75	L10 ov	1,03	3493	169	0,81	6,85	11,2
76	L11 ov	1,03	1635	134	0,38	6,80	11,6
77	M0 ov	1,10	5394	201	1,13	7,75	10,9
78	M1 ov	1,11	6009	205	1,26	7,10	11,0
79	M2 ov	1,10	7102	217	1,50	7,00	11,0
80	M3 ov	1,10	14399	306	3,05	7,50	10,8
81	M4 ov	1,09	11843	286	2,52	6,70	10,9
82	M5 ov	1,09	8128	237	1,74	7,50	10,9
83	M6 ov	1,08	4443	177	0,96	7,15	11,0
84	M7 ov	1,08	4209	174	0,91	7,60	11,0
85	M8 ov	1,08	2449	145	0,53	7,70	11,2
86	M9 ov	1,08	4495	183	0,98	7,60	11,0
87	M10 ov	1,07	5014	185	1,10	7,05	11,0
88	N1 ov	1,09	480	79	0,24	5,65	12,9
89	N2 ov	1,10	4420	187	1,46	7,35	11,0
90	N3 ov	1,10	3796	176	1,25	6,10	11,3
91	N4 ov	1,10	6838	224	2,24	7,55	10,9
92	N5 ov	1,11	836	113	0,27	7,35	12,2
93	N6 ov	1,11	5622	197	1,84	7,45	10,9
94	N7 ov	1,11	1286	116	0,42	7,95	11,5
95	N8 ov	1,12	2368	136	0,77	7,45	11,2
96	N9 ov	1,12	14936	321	4,86	7,45	10,8
97	N10 ov	1,10	1379	102	0,46	7,60	11,4
98	P1 ov	1,07	1532	115	0,49	6,35	11,6
99	P2 ov	1,06	6698	218	2,15	7,60	10,9
100	P3 ov	1,06	13122	298	4,23	6,85	10,9
101	P4 ov	0,98	8885	242	3,13	6,90	10,9
102	P5 ov	1,07	6596	206	2,12	6,15	11,1
103	P6 ov	1,06	9933	265	3,22	6,15	11,1
104	P7 ov	1,06	9691	257	3,14	6,70	11,0
105	P8 ov	1,06	12451	289	4,04	6,80	10,9
106	P9 ov	1,06	2174	131	0,71	6,15	11,4
107	P10 ov	1,06	154	70	0,05	6,25	20,6
108	Q5 ov	1,06	16340	326	5,42	6,35	11,0
109	Q6 ov	1,06	16780	341	5,66	6,45	11,0

ANEXO

Ano	Massa de Minério (t)	Volume de Bota-fora (m^3)	Massa de Bota-fora (t)	Massa de Minério Tratado na Usina (t)	Massa de Rejeitos Sólidos da Usina (t)
1977 a 1980	0	33.736.000	80.966.400	0	0
1981	148.697	398.984	957.562	0	0
1982	409.952	3.669.332	8.806.397	401.126	486.500
1983	388.840	2.726.104	6.542.650	358.541	405.151
1984	274.329	1.164.593	2.795.023	287.558	324.940
1985	287.536	1.152.196	2.765.270	237.429	268.295
1986	56.933	277.914	666.994	97.420	110.084
1987	286.147	694.572	1.666.973	270.769	305.968
1988	111.632	460.196	1.104.470	46.309	52.329
1989 a 1992	0	0	0	67.019	75.730
1993	93.128	168.843	405.223	53.479	60.432
1994	169.906	386.377	927.305	138.552	156.564
1995	89.427	242.416	559.981	131.495	148.588
1996	0	0	0	0	0
1997	0	0	0	1.100	1240
Total	**2.316.527**	**45.077.300**	**108.000.000**	**2.090.798**	**2.395.820** [a]

Anexo – Produção Mineira do CIPC de 1977 até 1997 (CIPRIANI, 2002)