

UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA

“Júlio de Mesquita Filho”

Instituto de Geociências e Ciências Exatas

Câmpus de Rio Claro

Dissertação de Mestrado

Gabrielle Roveratti Ceccato

ANÁLISE COMPARATIVA DA PERFORMANCE DE DISTINTOS
GAMASPECTRÔMETROS NO ESTUDO DA FORMAÇÃO IRATI, BACIA
DO PARANÁ

Rio Claro – SP
2021

UNIVERSIDADE ESTADUAL PAULISTA

“Júlio de Mesquita Filho”

Instituto de Geociências e Ciências Exatas

Câmpus de Rio Claro

GABRIELLE ROVERATTI CECCATO

ANÁLISE COMPARATIVA DA PERFORMANCE DE DISTINTOS
GAMASPECTRÔMETROS NO ESTUDO DA FORMAÇÃO IRATI, BACIA DO
PARANÁ

Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Geociências e Ciências Exatas do Campus de Rio Claro, da Universidade Estadual Paulista “Júlio de Mesquita Filho”, como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre junto ao Programa de Pós Graduação em Geociências e meio Ambiente.

Orientador: Prof. Dr. Daniel Marcos Bonotto

Rio Claro – SP

2021

R873a Roveratti, Gabrielle
Análise comparativa da performance de distintos
gamaespectrômetros no estudo da Formação Irati, Bacia do Paraná /
Gabrielle Roveratti. -- Rio Claro, 2021
102 p. : il., tabs., fotos, mapas + 1 CD-ROM

Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual Paulista (Unesp),
Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Rio Claro
Orientador: Daniel Marcos Bonotto

1. Gamaespectrometria. 2. Detectores. 3. Radiação. I. Título.

Sistema de geração automática de fichas catalográficas da Unesp. Biblioteca do Instituto de Geociências e Ciências Exatas, Rio Claro. Dados fornecidos pelo autor(a).

Essa ficha não pode ser modificada.

GABRIELLE ROVERATTI CECCATO

ANÁLISE COMPARATIVA DA PERFORMANCE DE DISTINTOS
GAMAESPECTRÔMETROS NO ESTUDO DA FORMAÇÃO IRATI, BACIA DO
PARANÁ

Dissertação de Mestrado apresentada ao Instituto de Geociências e Ciências Exatas do Campus de Rio Claro, da Universidade Estadual Paulista “Júlio de Mesquita Filho”, como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre junto ao Programa de Pós Graduação em Geociências e meio Ambiente.

Comissão Examinadora

Prof. Dr. Daniel Marcos Bonotto - Orientador
IGCE / UNESP - Rio Claro (SP)

Prof. Dr. Luis Henrique Mancini
Centro Politécnico / UFPR - Curitiba (PR)

Prof. Dr. José Reinaldo Cardoso Nery
UNIFAP - Macapá (AP)

Conceito: Aprovada.

Rio Claro/SP, 17 de Dezembro de 2021

A minha avó,
por todo o carinho, amor e sabedoria.

IN MEMORIAM

AGRADECIMENTOS

O presente trabalho foi realizado com apoio financeiro da Agência Nacional do Petróleo, Gás Natural e Combustível (ANP), gestão FINEP, que concedeu bolsa de mestrado junto ao PRH - Programa de Formação de Recursos Humanos para o Setor de Petróleo, Gás Natural e Biocombustíveis, PRH 40 - Geociências Aplicadas ao Setor de Petróleo e Gás.

Sou grata à possibilidade de uso das instalações do UNESPetro (Centro de Geociências Aplicadas ao Petróleo) e Labidro (Laboratório de Isótopos e Hidroquímica), cuja infraestrutura disponível permitiu a realização dos experimentos.

Ao meu Orientador, Prof. Dr. Daniel Marcos Bonotto, por todos os ensinamentos, pela paciência, disponibilidade e incentivos. Sem dúvida, a maneira como o processo de orientação aconteceu foi tão inspiradora quanto à capacidade intelectual e de trabalho desse sábio professor. Muito obrigada.

À minha mãe, pois, sem seu carinho, incentivo, criação e palavras direcionadoras eu jamais teria chegado até aqui. Obrigada pelo exemplo. Levo comigo sua postura e ensinamentos, sobre os quais sou eternamente grata.

Aos colegas do UNESPetro, Iata, Carina, Arai e Fabi. Obrigada pela paciência e companheirismo durante todos esses anos, especialmente nos momentos pandêmicos. Em especial, ao Carlos, e Márcia, cujos ombros amigos e apoio fizeram muita diferença.

A Prof. Dra. Rosemarie Rohn por toda troca de conhecimento tanto pessoal quanto profissional, pela paciência e disponibilidade.

Aos amigos do Labidro, Fábio, André e Marina, por todas as conversas, risadas e apoio, especialmente a Lilian por me emprestar seu ouvido para as reclamações.

Aos amigos e amigas externos à UNESP, agradeço o companheirismo e apoio, vocês foram muito importantes.

**“Estou entre aqueles que acham
que a ciência possui uma grande beleza”**

Marie Curie

RESUMO

Radiações possuem diversas aplicações tanto na ciência quanto na vida cotidiana da humanidade. Este trabalho descreve o uso da espectrometria de raios gama no estudo de amostras da Formação Irati, bacia sedimentar do Paraná. Esta técnica permite medir a radiação natural emitida pelos radionuclídeos pertencentes às séries de decaimento do ^{238}U ($e\text{U} = ^{226}\text{Ra} = ^{214}\text{Bi}$) e ^{232}Th ($e\text{Th} = ^{228}\text{Th} = ^{208}\text{Tl}$) e ^{40}K presentes nas amostras analisadas. Uma comparação dos resultados obtidos foi realizada para as leituras feitas em quatro detectores gama, um portátil de iodeto de sódio (*Digidart* NaI(Tl) - ORTEC), um de óxido de germanato de bismuto (BGO) e dois de cristal de NaI(Tl) de bancada, diferindo em sua geometria (Planar/Torre e Poço). A pesquisa buscou identificar o detector mais apropriado para a análise de amostras de rocha da formação estudada, a qual desperta interesse para o setor de óleo e gás. Após as leituras, fez-se uma análise estatística dos dados obtidos para os radionuclídeos, a qual indicou boa resposta dos gamaespectrômetros baseados nos detectores de cintilação de NaI(Tl) para a análise das amostras de rochas, ao permitirem longos tempos de leitura. Os resultados obtidos indicaram valores extremamente significativos do coeficiente de correlação de Pearson entre o cristal tipo Torre (Planar) e Poço ($r = 0,75$ para tório e $r = 0,71$ para potássio), além de duas correlações muito significativas entre os detectores Portátil e Torre ($r = 0,53$ para urânio e $r = 0,59$ para tório e potássio). Uma última correlação estatisticamente significativa foi encontrada entre os detectores Portátil e Poço para potássio com valor de $r = 0,46$, além de leituras de tório cerca de duas a três vezes maiores que o urânio, no detector portátil. Relativamente ao espectrômetro BGO, este não apresentou variabilidade significativa nos resultados, por não permitir longos tempos de detecção requeridos para a análise das amostras de rocha da Formação Irati, devido a sua baixa radioatividade. Algumas diferenças nos resultados obtidos pelos gamaespectrômetros puderam ser atribuídas a fatores geométricos, tamanho das amostras e formatos, bem como protocolo adotado para a preparação das amostras.

Palavras-chave: Gamaespectrometria, detectores, radiação.

ABSTRACT

Radiation has several applications both in science and in the everyday life of humanity. This work describes the use of gamma ray spectrometry in the study of samples from the Irati Formation, Paraná sedimentary basin. This technique allows measuring the natural radiation emitted by radionuclides belonging to the decay series of ^{238}U ($e\text{U} = ^{226}\text{Ra} = ^{214}\text{Bi}$) and ^{232}Th ($e\text{Th} = ^{228}\text{Th} = ^{208}\text{Tl}$) and ^{40}K present in the analyzed samples. A comparison of the obtained results was made for the readings performed in four gamma ray detectors, a portable sodium iodide (*Digidart* NaI(Tl) - ORTEC), a bismuth germanate oxide (BGO) and two bench NaI(Tl) crystals, differing in their geometry (Planar/Tower and Well types). The research aims to identify the most appropriate detector for the analysis of rock samples from the studied formation, which arouses interest for the oil and gas sector. After the readings of rock samples, a statistical analysis of the obtained data for radionuclides was performed, which indicated a good response of gamma spectrometers based on NaI(Tl) scintillation detectors as they allow longer counting times. The results indicated extremely significant Pearson's coefficient correlation values between the crystals Tower (Planar) and Well ($r = 0.75$ for thorium and $r = 0.71$ for potassium). Additionally, it was also found two very significant correlations between the Portable and Tower detectors ($r = 0.53$ for uranium and $r = 0.59$ for thorium and potassium). A last statically correlation was found between the detectors Portable and Well for potassium with value of $r = 0.46$, despite the thorium readings where about two or three times higher than the uranium ones. Regarding the BGO spectrometer, it did not present significant variability in the results, as it did not allow longer detection times as required for the analysis of rock samples from Irati Formation, due to its low radioactivity. Some differences in the obtained results by gamma spectrometers could be attributed to geometric factors, sample size and formats, as well as the protocol adopted for sample preparation.

Key-words: Gammaspectrometry, detectors, radiation.

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - Canais de pico e energia associada aos radionuclídeos utilizados na calibração do detector tipo Poço	48
Tabela 2 - Parâmetros utilizados para o espectrômetro Digidart, visando à construção das curvas de calibração em concentração dos radioelementos de interesse	51
Tabela 3 - Parâmetros utilizados para o espectrômetro Poço visando à construção das curvas de calibração em função da concentração dos radioelementos de interesse	52
Tabela 4 - Tabela síntese dos parâmetros estatísticos relacionados com as amostras analisadas pelo detector BGO.	63
Tabela 5 - Valores de classes utilizados para a análise estatística dos dados	64
Tabela 6 - Resultados obtidos para as leituras das amostras pulverizadas com o BGO inserido em blindagem de Pb	67
Tabela 7 - Resultados da análise de amostras selecionadas de rochas da Formação Irati pelos três detectores de NaI(Tl). Em vermelho, as amostras abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro	69
Tabela 8 - Resultados obtidos na análise das amostras da Formação Irati. Em vermelho, as amostras abaixo do Limite de detecção do gamaespectrômetro	75
Tabela 9 - Dados obtidos pelo Digidart para as amostras de calcário. Em vermelho, as amostras abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro	83
Tabela 10 - Dados obtidos com o detector Digidart para as amostras de folhelho	85
Tabela 11 - Dados obtidos com o detector Digidart para as amostras de diabásio. Em vermelho, amostra abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro	85
Tabela 12 - Dados obtidos com o detector Digidart para as amostras de diabásio (horizontal). Em vermelho, amostra abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.....	86

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1 - Representação do efeito fotoelétrico	17
Figura 2 - Representando a Absorção Fotoelétrica	18
Figura 3 - Representação do espalhamento Compton	19
Figura 4 - Representação do espalhamento Compton. O espectro à direita ilustra a distribuição da energia do elétron Compton de recuo.	19
Figura 5 - Representação da produção de pares	22
Figura 6 - Coeficientes de atenuação mássicos em função da energia para os principais materiais utilizados neste trabalho.....	23
Figura 7 – (a) Ilustração do Espectro eletromagnético. (b) Regiões de predominância das 3 formas de interação da radiação γ . As curva indicam os valores de Z e $h\nu$ para os quais as probabilidades dos processos vizinhos são iguais	25
Figura 8 - Estrutura da banda de energia de um cristal cintilador ativado	28
Figura 9 - Esquema de uma fotomultiplicadora	29
Figura 10 - Ilustração da resolução de energia do espectrômetro de raios gama.	30
Figura 11 - Eficiência da conversão de luz de cintilação em elétrons no fotocátodo	31
Figura 12 –Eficiência de fotopico para diferentes energias de emissão gama para o NaI(Tl) e BGO	35
Figura 13 - Esquema de sistema gamaespectrométrico empregando analisador multicanal... ..	36
Figura 14 - Espectro de emissão gama experimental obtido pelo detector de NaI(Tl) de 20,32 cm de diâmetro e 10,16 cm de altura para uma fonte de ^{60}Co sem um simulador antropomórfico	36
Figura 15 - Espectro de emissão gama experimental pelo detector de NaI(Tl) de 20,32 cm de diâmetro e 10,16 cm de altura para a fonte de ^{137}Cs sem um simulador antropomórfico	37
Figura 16 - Interações na função resposta do detector	39
Figura 17 - Espectros diferenciais para detectores comerciais.....	39
Figura 18 - Espectro de linha da emissão de raios gama do: a) potássio; b) urânio; c) tório ..	40
Figura 19 - Espectro de raios gama típico de detector de NaI(Tl) mostrando a posição das janelas de energia convencionais.....	41
Figura 20 - Alguns tipos de interações secundárias que podem interferir na função resposta dos detectores comerciais	43
Figura 21 - Influência da radiação secundária na resposta do detector	44
Figura 22 - Espectrômetro BGO.....	45
Figura 23 – Foto do detector portátil e do equipamento <i>Digidart</i>	45
Figura 24 - Detectores de NaI(Tl) de bancada tipo Torre (acima) e Poço (embaixo).....	46
Figura 25 - Espectrômetro portátil <i>Digidart</i> e anéis de blindagem	47

Figura 26 - Espectrômetros de bancada Torre (à esquerda) e Poço (à direita).....	76
Figura 27 - Espectros das fontes usadas no para a calibração de energia no espectrômetro com detector Poço	87
Figura 28 - Curva de calibração de energia.....	50
Figura 29 - Curvas de calibração construídas para o detector <i>Digidart</i>	54
Figura 30 - Curvas de calibração construídas para o detector Poço.....	55
Figura 31 - Localização da área de amostragem	57
Figura 32 - Parte superior do paredão de amostragem. Formação Irati, Pedreira Partecal, Distrito de Assistência.	58
Figura 33 - Esquema de amostragem da Formação Irati, do meio do paredão da Pedreira Partecal, Distrito de Assistência	59
Figura 34 - Amostragem da parte inferior do paredão de amostragem. Formação Irati, Pedreira Partecal, Distrito de Assistência.....	60
Figura 35 - Amostra de Oil Shale.....	61
Figura 36 - Foto da rocha analisada e detector BGO	63
Figura 37 - Blocos de amostras usados para cálculo da densidade	64
Figura 38 - Gráficos da distribuição estatística dos dados obtidos para urânio, tório e potássio no BGO.....	65
Figura 39 - Arranjo experimental para as leituras das amostras pulverizadas com o BGO inserido em blindagem	67
Figura 40 - Gráficos das correlações eTh e K para as leituras dos detectores Torre e Poço..	70
Figura 41 - Gráficos das correlações eU, eTh e K para as leituras dos detectores Portátil e Torre e para K entre os detectores Portátil e Poço	71
Figura 42 - Gráficos das correlações não significativas entre os detectores de NaI(Tl)	73
Figura 43 - Gráficos para as leituras de Urânio, Tório e Potássio nos detectores de iodeto de sódio	74
Figura 44 - Variação das medidas para os radioelementos urânio, tório e potássio nas amostras de rochas da Formação Irati obtidas com o detector Portátil	79
Figura 45 - Croqui da parte superior do paredão de amostragem	81
Figura 46 - Esquema de amostragem da parte inferior do paredão de amostragem.....	82

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	15
1.1 Justificativa e Objetivo	16
2. RADIOATIVIDADE: CONCEITOS FUNDAMENTAIS	16
2.1 Interação da radiação com a matéria	16
2.2 Efeito Rayleigh	16
2.3 Efeito Fotoelétrico	17
2.4 Absorção fotoelétrica.....	17
2.5 Efeito Compton	18
2.6 Produção de Pares.....	21
2.7 Atenuação de Raios Gama.....	22
2.8 Interação de raios gama com a matéria.....	24
3. GAMAESPECTROMETRIA	26
3.1 Detectores cintiladores	28
3.1.1 Resolução em energia.....	29
3.1.2 Produção de elétrons no fotocátodo da fotomultiplicadora.....	31
3.1.3 Fatores que interferem na perda de resolução	32
3.1.4 Iodeto de sódio	33
3.2 Detectores de Germanato de Bismuto (BGO)	34
3.3 Espectros em analisadores multicanais	35
3.4 Resposta de detectores comerciais	37
3.5 Geometria fonte-detector	40
3.6 Eventos que interferem na função resposta do detector	41
3.6.1 Escape de elétrons secundários.....	41
3.6.2 Escape de raio-X característico	41
3.6.3 Interações secundárias criadas pelo decaimento radioativo	42
3.6.3.1 Radiação de aniquilação	42
3.6.3.2 <i>Bremsstrahlung</i>	42
3.6.3.3 Efeitos dos materiais envoltórios.....	42
4. CALIBRAÇÃO DOS GAMAESPECTRÔMETROS	44
5. ÁREA DE ESTUDO PARA APLICAÇÃO DOS MÉTODOS GAMAESPECTROMÉTRICOS	56
6. RESULTADOS E DISCUSSÃO	62

6.1 BGO.....	62
6.2 Uso de blindagem de Pb para o detector BGO	66
6.3 Detectores de NaI(Tl) de bancada e portátil	68
6.4 Aplicabilidade do detector portátil Digidart na análise de amostras da Formação Irati.....	75
7. CONCLUSÃO.....	87
REFERÊNCIAS	72
APÊNDICE A	93
APÊNDICE B.....	97
APÊNDICE C	100

1. INTRODUÇÃO

Os detectores mais comumente usados em aplicações não destrutivas (NDA) de raios gama são de dois tipos: o detector de cintilação de iodeto de sódio dopado com tálio (NaI(Tl)) e o detector de estado sólido de germanato de bismuto, também conhecido como *BGO* ($Bi_4Ge_3O_{12}$), que se tornou disponível no final da década de 1970. O *BGO* é um cintilador inorgânico puro, não necessitando de um ativador para promover o processo de cintilação, por conta de sua luminescência estar associada à transição ótica do Bi^{3+} (IAEA, 2021).

Os detectores de cintilação de NaI(Tl), para um grande intervalo de energia, possuem a aplicabilidade de converter linearmente a energia emitida por radiação ionizante em luz visível e possuem boa eficiência de cintilação. Por conta do alto número atômico do iodo ($Z = 53$) grande parte da energia emitida no NaI(Tl) é devido à absorção fotoelétrica (KNOLL, 2000). Essa espécie de cintilador é de fácil obtenção em peças maiores, dopadas com tálio e normalmente encapsuladas com alumínio, pois é um material altamente higroscópico (TAUHATA et al., 2001).

Os espectros obtidos com os detectores de radiação gama, geralmente, possibilitam o cálculo das taxas de contagens ou das áreas dos picos característicos dos radionuclídeos. Tais valores, juntamente com a eficiência de detecção, são empregados no cálculo da atividade do material radioativo presente na amostra. A eficiência de detecção em uma medição realizada depende de vários fatores: a eficiência intrínseca do detector, a geometria da medida (ângulo sólido, posição, forma do material a ser medido e distribuição do radionuclídeo no material) e as propriedades do radionuclídeo (meia-vida, energias e probabilidade de emissão).

Anterior à realização das medições dos espectros, é imprescindível calibrar os detectores para que o valor obtido corresponda à melhor aproximação possível do número de fótons emitidos pelos radionuclídeos presentes na amostra. Esta metodologia é comumente realizada usando fontes de radiação calibradas que emitem radiação com energias na faixa de interesse. Graças à disponibilidade de códigos de Monte Carlo validados e de computadores com um custo reduzido, aliados à grande capacidade de processamento, fez-se possível a simulação numérica da resposta de detectores de radiação com a obtenção de resultados confiáveis (VITORELLI et al., 2005; BACCOUCHE et al., 2012).

1.1 Justificativa e Objetivo

O objetivo principal deste trabalho consiste realizar análise comparativa do performance de distintos sistemas gamaespectrométricos em medidas da radioatividade natural proveniente do ^{40}K e dos radionuclídeos das séries do ^{238}U e ^{232}Th , que serão utilizados no estudo de formação geológica ocorrendo nas proximidades do município de Rio Claro (SP), mais especificamente no Distrito de Assistência, onde aflora a Formação Irati da bacia sedimentar do Paraná.

O presente trabalho justifica-se, pois, contribui para ampliar o conhecimento relacionado com a presença da radioatividade natural no ambiente, além de trazer informações sobre o detector mais adequado para a realização de medidas gamaespectrométricas nas rochas matrizes selecionadas.

2. RADIOATIVIDADE: CONCEITOS FUNDAMENTAIS

2.1 Interação da radiação com a matéria

A radiação eletromagnética tem a propriedade de interagir diretamente com os elétrons ou com os núcleos dos átomos da matéria em que incide. Essa radiação também pode penetrar a amostra sem que ela sofra qualquer tipo de reação, a depender das propriedades dessa radiação e do meio no qual ela se propaga. Os principais modos de interação da radiação gama são efeito Rayleigh (ou espalhamento coerente), efeito fotoelétrico, efeito Compton (ou espalhamento incoerente) e produção de pares elétron-pósitron (YOSHIMURA, 2009). Para esse trabalho, os modos de interação da radiação gama com a matéria mais relevantes e que também possuem grande importância na espectrometria gama são o efeito fotoelétrico, o espalhamento Compton e a produção de pares.

2.2 Efeito Rayleigh

Esse efeito acontece especialmente para fótons de baixas energias (até algumas centenas de keV) em materiais de alto número atômico. Dessa forma, os átomos do material absorvedor não são excitados ou ionizados. Os fótons são espalhados com a mesma energia dos fótons incidentes mudando, unicamente, sua direção de propagação, enquanto que o ângulo de deflexão médio diminui com o aumento da energia dos fótons incidentes (KNOLL, 2000). Não existindo transferência de energia, esse processo não produz eventos nos

detectores, mas sim, na fonte ou no simulador antropomórfico que podem mascarar a direção de emissão dos fótons.

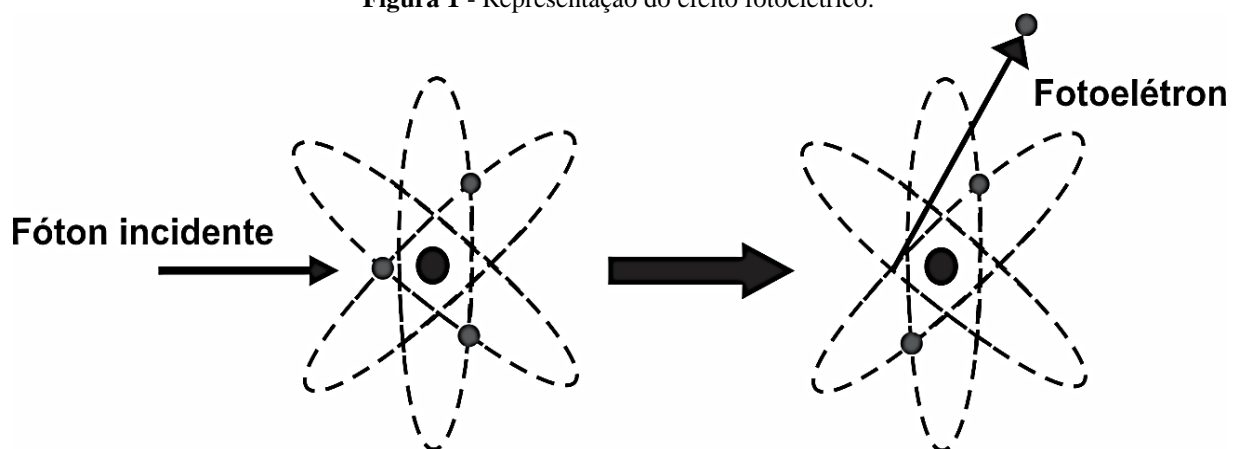
2.3 Efeito Fotoelétrico

Representado na Figura 1, nesse efeito, o fóton incidente é totalmente absorvido por um elétron ligado que é ejetado com energia cinética T , ilustrada na Equação 1, sendo igual à diferença entre a energia do fóton incidente E_i e a energia de ligação do elétron E_b .

$$T = E_i - E_b \quad \text{Equação 1}$$

Para isto, o fóton incidente deve ter, minimamente, uma energia igual à energia de ligação do elétron, que nesse caso possuirá energia cinética igual a zero. Ao ser ejetado da camada, o elétron deixa uma lacuna que será preenchida pelo rearranjo dos elétrons. Assim, é possível ocorrer a liberação de um raio X característico ou de um elétron de uma camada mais externa. O elétron ejetado é denominado elétron Auger (KNOLL, 2000; CHERRY, 2003).

Figura 1 - Representação do efeito fotoelétrico.



Fonte: Autoria própria, 2021.

2.4 Absorção fotoelétrica

É a interação na qual o fóton incidente desaparece. Esse fóton, de energia $h\nu$, interage com o átomo como um todo, transferindo sua energia para um elétron, normalmente, que pertence à camada mais interna do átomo. Para energias típicas de raios gamas, um elétron da camada K é ejetado com uma energia cinética E_e , dada por:

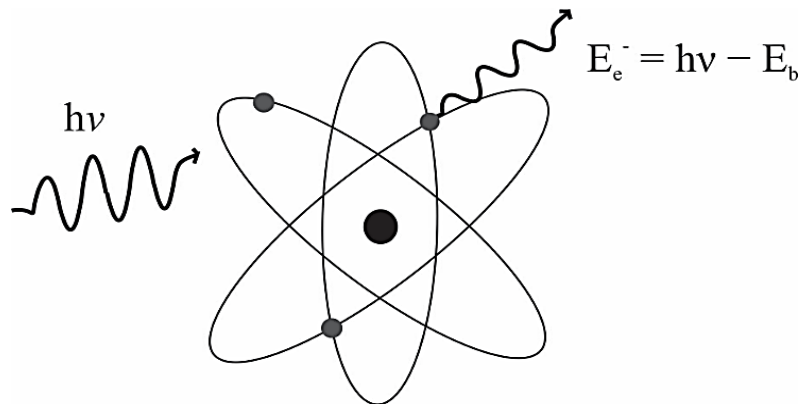
$$E_e = h\nu - E_b \quad \text{Equação 2}$$

Onde: E_b é a energia de ligação do elétron orbital (da ordem de 1-10 keV). A conservação de momento necessita que o átomo recue neste processo, mas essa energia de recuo é muito pequena, sendo, comumente, desprezada.

A lacuna que se forma na camada eletrônica, resultando da emissão do fotoelétron, tende a ser eficientemente preenchida através de um rearranjo eletrônico. Dessa forma, ocorre a liberação da energia de ligação na forma de raios X característicos ou de elétrons Auger. Contudo, os elétrons Auger são de baixa energia, dessa forma, seu alcance é extremamente pequeno (inferior a 1 mm) (CULLITY, 1968; KNOLL, 2000). Já os raios X característicos atingem certa distância (tipicamente 1 mm) antes de serem absorvidos por meio de interações fotoelétricas com as camadas eletrônicas mais externas dos átomos absorvedores.

Pela energia de ligação ser muito menor que a energia do fóton gama, se nada escapa do detector, a soma das energias cinéticas dos fotoelétrons deve ser igual à energia do fóton gama incidente. Assim, a absorção fotoelétrica (Figura 2) é um processo ideal para a determinação da energia do raio gama original.

Figura 2 - Representando a Absorção Fotoelétrica.

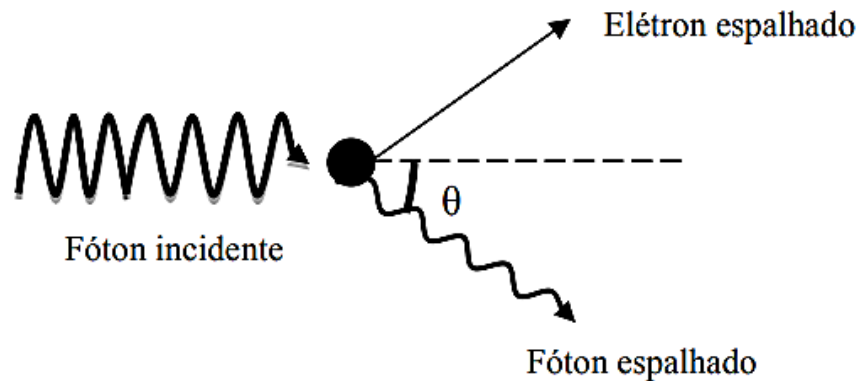


Fonte: Autoria própria, 2021.

2.5 Efeito Compton

No espalhamento Compton (Figura 3), um fóton colide preferivelmente com um elétron livre (da camada mais externa do átomo, possuindo fraca ligação) o qual recebe parte da energia e momento do fóton incidente. O elétron espalhado é ejetado com energia cinética T (Equação 3) sendo igual à diferença entre a energia $h\nu$ do fóton incidente e a energia $h\nu'$ do fóton espalhado, que é defletido em um ângulo θ (KNOLL, 2000; CHERRY, 2003).

Figura 3 - Representação do espalhamento Compton.



Fonte: Kakoi, 2013.

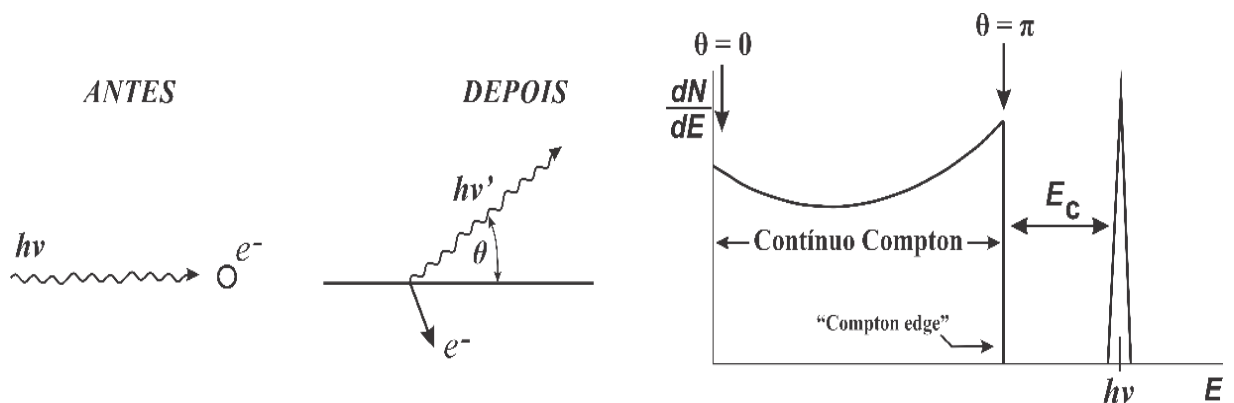
$$T = hv - hv' \quad \text{Equação 3}$$

Sabendo que a energia e o momento são conservados, é possível verificar que a energia do fóton hv' espalhado depende da energia do fóton incidente hv , do ângulo de espalhamento θ e da massa de repouso do elétron M_0 , conforme a Equação 4:

$$hv' = \frac{hv}{1 + \frac{hv}{M_0 c^2} (1 - \cos \theta)} \quad \text{Equação 4}$$

O resultado esperado do espalhamento Compton é a criação de um elétron de recuo e um fóton de raio gama espalhado, tendo a divisão de energia entre eles dependente do ângulo de espalhamento (Figura 4) (LIMA,2006).

Figura 4 - Representação do espalhamento Compton. O espectro à direita ilustra a distribuição da energia do elétron Compton de recuo.



Fonte: Knoll, 1979.

A energia do gama espalhado é dada por:

$$hv' = \frac{hv}{1 + \left[\left(\frac{hv}{m_0c^2} \right) \cdot (1 - \cos \theta) \right]}$$

Equação 5

Onde: θ é o ângulo de espalhamento do fóton e $m_0c^2 = 0,511 \text{ MeV}$ é a energia de repouso do elétron. A Figura 4 ilustra um espalhamento Compton, onde o raio gama incidente cede parte de sua energia para o elétron, por consequência, resultando em um raio gama espalhado (LIMA, 2006).

A energia cinética do elétron de recuo é dada por:

$$E_e = (hv - hv') = hv \cdot \frac{\left[\frac{hv}{m_0c^2} \cdot (1 - \cos \theta) \right]}{\left[1 + \frac{hv}{m_0c^2} \cdot (1 - \cos \theta) \right]}$$

Equação 6

Pode-se identificar duas situações extremas:

- Sendo $\theta \cong 0$, $hv' \cong hv$ e $E_e \cong 0$. Nessa condição, o elétron de recuo possui uma energia muito pequena e o fóton espalhado possui praticamente a mesma energia do fóton incidente.
- Sendo $\theta \cong \pi$. Essa condição representa a energia máxima que pode ser transferida ao elétron de recuo.

$$hv' \Big|_{\theta=\pi} = \frac{hv}{\left(1 + \frac{2hv}{m_0c^2} \right)}$$

Equação 7

$$E_e \Big|_{\theta=\pi} = hv \cdot \frac{\left(\frac{2hv}{m_0c^2} \right)}{\left(1 + \frac{2 \cdot hv}{m_0c^2} \right)}$$

Equação 8

Em circunstâncias normais, todos os ângulos podem ocorrer. Logo, um espectro contínuo de energias pode ser transferido ao elétron. Para qualquer raio gama de energia específica, a distribuição de energia do elétron possui a forma do espectro ilustrado na Figura 4.

O *gap* de energia E_c entre a energia do elétron de recuo Compton máximo e o fóton incidente é dado de acordo com a equação a seguir:

$$E_c = hv - E_e \Big|_{\theta=\pi} = hv \cdot \frac{(hv)}{\left(1 + \frac{2 \cdot hv}{m_0 c^2}\right)}$$

Equação 9

No limite em que a energia do fóton incidente é grande, ou $hv \gg \left(\frac{m_0 c^2}{2}\right)$, essa diferença de energia tende a um valor constante igual a :

$$E_c \cong \frac{m_0 c^2}{2} \quad (= 0,256 \text{ Mev})$$

Equação 10

O espalhamento Compton admite que o efeito aconteça com elétrons livres. No material dos detectores atuais, a energia de ligação dos elétrons é passível de afetar a forma do contínuo Compton. Esse efeito é mais proeminente para raios gama incidentes de baixa energia por envolverem o arredondamento da subida do contínuo perto da extremidade e introduz um declive finito na descida abrupta da borda Compton. Esses efeitos acabam, rotineiramente, sendo sempre mascarados pela resolução de energia do detector, podendo ficar evidentes em espectros utilizando detectores com alta resolução (LIMA, 2006).

A probabilidade de um espalhamento Compton ocorrer está diretamente proporcional à energia do fóton e inversamente proporcional ao número atômico do material, ou seja:

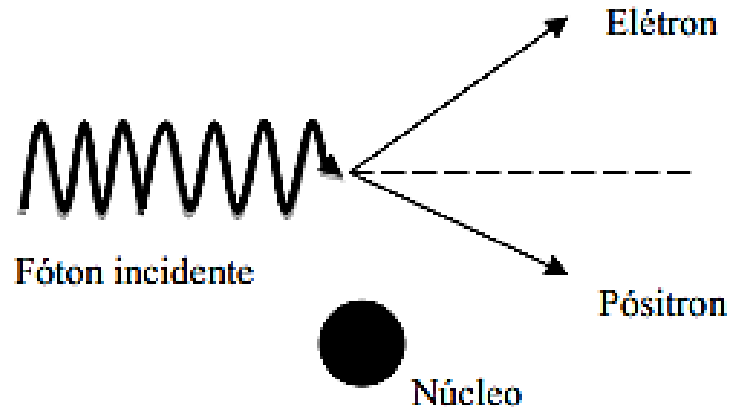
$$\sigma_{esp.Compton} \propto \frac{E}{Z}$$

Equação 11

2.6 Produção de Pares

A produção de pares (Figura 5) ocorre quando um fóton, com energia mínima de 1,022 MeV, se extingue ao interagir com o campo elétrico de um núcleo atômico, ocasionando a produção de um par elétron-pósitron. O par concebido excita e ioniza o meio absorvedor formando elétrons secundários. Durante o percurso no meio, pósitrons com 511 keV aniquilam-se gerando, preferencialmente, um par de fótons que serão emitidos em direções opostas (KNOLL, 2000; CHERRY, 2003).

Figura 5 - Representação da produção de pares.



Fonte: KAKOI, 2013.

2.7 Atenuação de Raios Gama

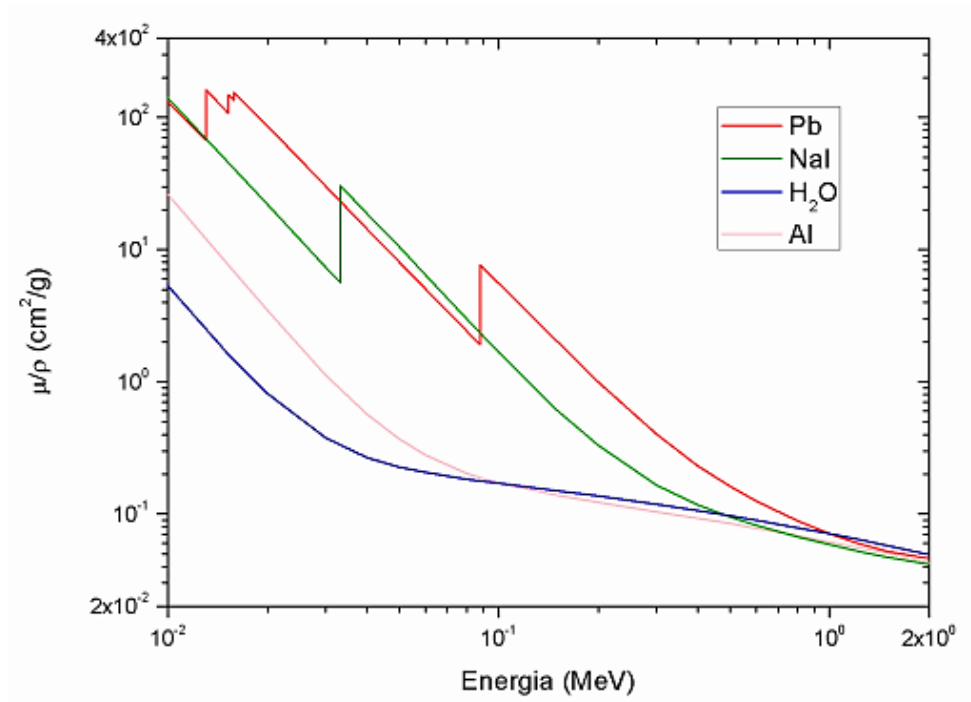
No momento em que um feixe de raios gama incide em um material absorvedor de espessura x , os fótons podem atravessá-lo sem que haja nenhuma perda de energia ou eles podem sofrer algum tipo de interação (fotoelétrico, Compton ou produção de pares). Essa atenuação do feixe pode ser representada pela Equação 12.

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu x} \quad \text{Equação 12}$$

Onde: I_0 é a intensidade do feixe de fótons monoenergéticos, que incidem perpendicularmente em um material homogêneo, I representa a intensidade do feixe de fótons de mesma energia e direção, que emergem após ter atravessado o absorvedor, μ é o coeficiente de atenuação linear que é formado pela soma dos coeficientes parciais de cada um dos efeitos, $\mu = \mu_{EF} + \mu_{EC} + \mu_{PP}$ (efeito fotoelétrico, efeito Compton e produção de pares, respectivamente). Estes coeficientes variam conforme a energia do fóton e densidade do material absorvedor. A cada interação, um fóton pode ser absorvido ou espalhado a depender da probabilidade de cada efeito por unidade de comprimento do meio absorvedor (KNOLL, 2000; YOSHIMURA, 2009). Como os fótons que sofrem espalhamento Rayleigh não depositam energia no meio absorvedor, este efeito não será considerado nesta abordagem.

Devido ao fato de μ variar conforme a densidade do material absorvedor, costuma-se utilizar o coeficiente de atenuação mássico $\frac{\mu}{\rho}$, onde ρ é a densidade do meio. Os valores dos coeficientes de atenuação mássico dos principais materiais utilizados nesse trabalho estão representados na Figura 6.

Figura 6 - Coeficientes de atenuação mássicos em função da energia para os principais materiais utilizados neste trabalho.



Fonte: NIST, 2014.

O coeficiente de atenuação mássico do efeito fotoelétrico para fótons com energias maiores que cerca de 100 keV depende do número atômico e da energia do fóton e é dado conforme a relação ilustrada na Equação 13 (ATTIX, 1986):

$$\frac{\mu_{EF}}{\rho} \tilde{\alpha} \left(\frac{Z}{hv}\right)^3 \quad \text{Equação 13}$$

Para o efeito Compton, supõe-se que o elétron esteja livre, e a seção de choque é dada pela fórmula de Klein-Nishina conforme a Equação 14 (ATTIX, 1986):

$$\sigma_e = 2\pi r_0^2 \left\{ \frac{1+\alpha}{\alpha^2} \left[\frac{2(1+\alpha)}{1+2\alpha} - \frac{\ln(1+2\alpha)}{\alpha} \right] + \frac{\ln(1+2\alpha)}{2\alpha} - \frac{1+3\alpha}{(1+2\alpha)^2} \right\} \quad \text{Equação 14}$$

Onde: $r_0 = e^2 / m_0 c^2$, $\alpha = hv / m_0 c^2$, hv é dada em MeV e $m_0 c^2 = 0,511$ MeV. O correspondente coeficiente de atenuação mássico é dado pela Equação 15:

$$\frac{\mu_{EC}}{\rho} = \frac{N_A Z}{A} \sigma_e \quad \text{Equação 15}$$

Onde: N_A é a constante de Avogadro, Z é o número de elétrons por átomo de um elemento ou por molécula de um composto e A é massa atômica ou molecular.

O coeficiente de atenuação mássico para a produção de pares é dado pela Equação 16 (ATTIX, 1986):

$$\frac{\mu_{PP}}{\rho} = \sigma_0 Z^2 \bar{P} \frac{N_A}{A} \quad \text{Equação 16}$$

Onde: $\sigma_0 = 5,8 \cdot 10^{-28} \text{ cm}^2/\text{elétron}$ e o parâmetro \bar{P} é uma função de $h\nu$ e Z .

Considerando-se estas interações, é possível observar que informações importantes podem ser extraídas da Figura 6. Considerando-se o intervalo de energia de interesse deste trabalho, tanto a água, que é um material utilizado para simular tecidos biológicos, quanto o alumínio, que é o material utilizado para recobrir o cintilador, possuem baixa atenuação. De outra forma, tanto o material do cintilador (NaI), o qual constitui o detector, quanto o chumbo (utilizado para blindagem) possuem altos coeficientes de absorção. Assim, o uso destes materiais implica em grande absorção para alta eficiência do detector, bem como para evitar que fótons provenientes de direções indesejadas incidam no detector.

2.8 Interação de raios gama com a matéria

A radiação gama está inclusa no espectro eletromagnético (Figura 7(a)), tendo os raios gama velocidade igual à da luz (c) e uma energia discreta (E), frequência (f) e comprimento de onda (λ). Estas são relacionadas por (LIMA, 2006):

$$E = hf = \frac{hc}{\lambda} \quad \text{Equação 17}$$

Onde $h = \text{constante de Planck} = 6,6261 \times 10^{-34} \text{ Js}$; $c = \text{velocidade da luz}$

O comprimento de onda da radiação eletromagnética com $E < 40 \text{ keV}$ equivale aos raios-X, enquanto que os raios gama correspondem à parte do espectro eletromagnético onde $E > 40 \text{ keV}$. Os raios gama interagem com os átomos da matéria por meio de três processos principais (ICRU, 1994): o efeito fotoelétrico, espalhamento Compton e produção de pares. O efeito fotoelétrico é o processo de absorção predominante em baixas energias (poucas centenas de keV), onde toda a energia de um quantum gama é absorvida em uma colisão com um elétron de um átomo.

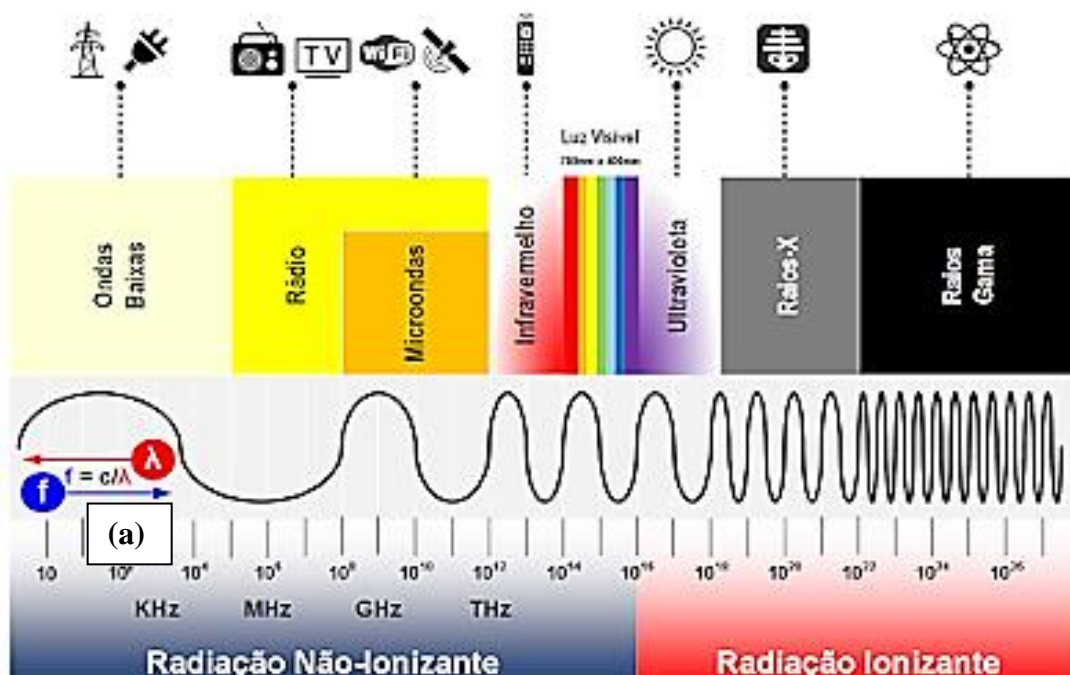
No momento em que a energia de ligação dos elétrons orbitais se torna desprezível em relação à energia do fóton incidente, aumenta-se, consideravelmente, a probabilidade de

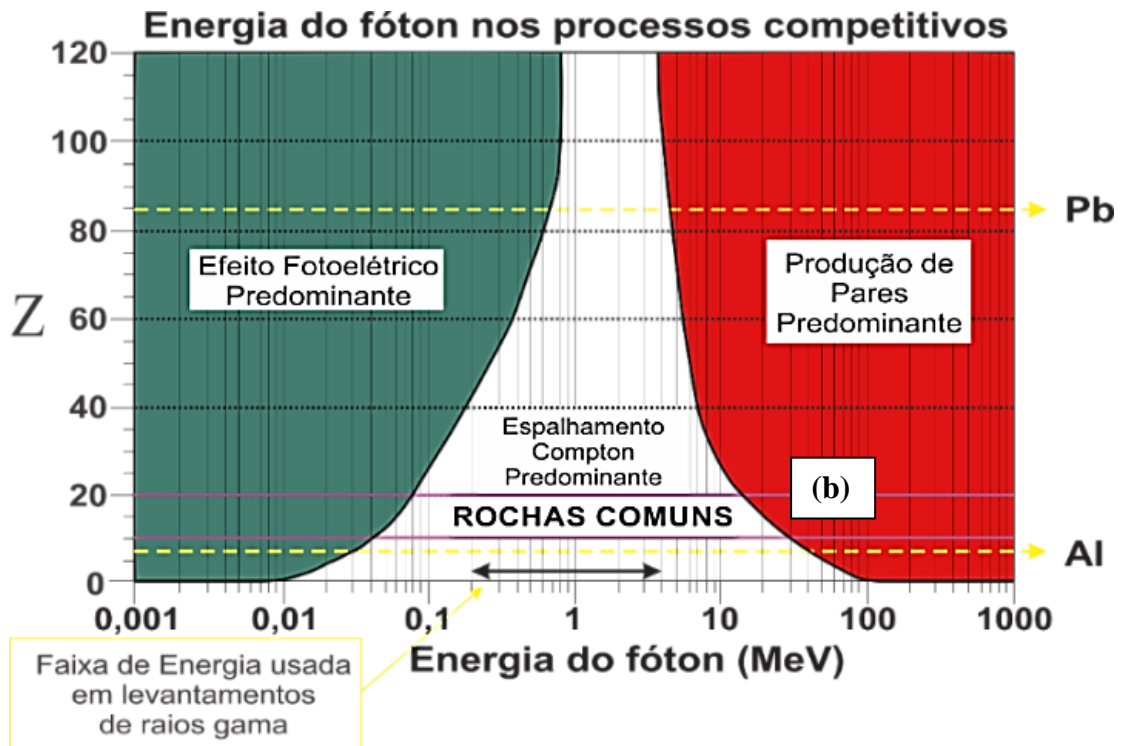
ocorrência de espalhamento Compton, além dos casos em que a energia da radiação gama incidente possui valor mais elevado (IAEA, 2014).

O espalhamento Compton predomina em energias moderadas e corresponde a uma colisão de um fóton incidente com um elétron. O fóton incidente perde parte de sua energia para o elétron e é "espalhado" através de um ângulo em relação à sua direção original. A produção de pares ocorre em energias superiores a $1,02 \text{ MeV}$, tendo sua predominância em altas energias ($> 5 \text{ MeV}$) e sendo o processo pelo qual um fóton incidente é completamente absorvido, resultando na criação de um par elétron-pósitron no campo eletrostático de um núcleo. O número atômico do material também possui uma grande influência nas probabilidades de interação. A maior variação ocorre com a absorção fotoelétrica que varia com Z . Como a absorção fotoelétrica é a mais desejada, a escolha de detectores com alto número atômico para a espectrometria é a melhor opção.

A probabilidade de que um fóton interaja com a matéria, é expressa por meio da seção transversal $\sigma \text{ (m}^2\text{)}$, depende da energia (E) do fóton, da composição da matéria, como ilustra a Figura 7(b), a qual demonstra a relação entre os processos de espalhamento e absorção, a energia do fóton incidente e o número atômico do meio absorvente. Para os raios gama terrestres naturais (E até $2,615 \text{ MeV}$) e para matéria compreendendo rocha, água e ar, o espalhamento Compton é o processo de interação predominante (LIMA, 2006).

Figura 7 – (a) Ilustração do Espectro eletromagnético (BRITO, 2013). (b) Regiões de predominância das 3 formas de interação da radiação γ . As curva indicam os valores de Z e $h\nu$ para os quais as probabilidades dos processos vizinhos são iguais.





Fonte: EVANS, 1955.

Em geral, os fótons de raios gama perdem energia através de sucessivos eventos de espalhamento Compton, até que os fótons de baixa energia resultantes são então absorvidos através do efeito fotoelétrico. Como resultado da interação de raios gama com a matéria, a intensidade da radiação diminui conforme a distância da fonte. A absorção de raios gama de uma energia específica em questão é descrita por um coeficiente de atenuação linear μ (m^{-1}) ou por um coeficiente de atenuação de massa μ/ρ (m^2/kg).

Para um feixe estreito de raios gama, a sua atenuação pode ser modelada por uma função exponencial. A faixa de absorção de raios gama de radionuclídeos naturais é cerca de 700 m no ar, até 0,5 m nas rochas e alguns cm no chumbo. Os raios gama têm uma energia discreta que é específica para um determinado radionuclídeo. Uma vez que os raios gama constituem o componente mais penetrante da radiação natural e artificial, eles são amplamente utilizados nos estudos de radiação ambiental (LIMA, 2006).

3. GAMAESPECTROMETRIA

Devido a exploração intensiva de urânio, que ocorreu de 1947 a 1951, foram fabricadas as primeiras fontes radiométricas aerotransportáveis nos EUA, Canadá, antiga URSS e Austrália. Os gama-espectrômetros aerotransportáveis, terrestres e laboratoriais foram desenvolvidos e aplicados à exploração mineral e no monitoramento ambiental entre as

décadas de 1960 e 1970, permitindo, dessa forma, a estimativa *in situ* de concentrações de radioelementos como o potássio, urânio e tório. Os equipamentos desenvolvidos posteriormente incluíram o uso de analisadores multicanais, contadores digitais, e possibilitaram o desenvolvimento de detectores semicondutores e melhorias no processamento de dados (IAEA, 2003).

O sensoriamento remoto da radioatividade ambiental é obtido principalmente por meio da detecção da radiação gama. Os raios gama são a radiação mais penetrante proveniente de fontes naturais e antrópicas. Radionuclídeos individuais emitem raios gama de energias específicas que são características de um elemento e isótopo. As medições de raios gama podem ser realizadas por medidores de contagem total que registram raios gama emitidos de todas as energias, os quais são usados para monitorar o nível total de radiação gama no campo e detectar a presença de fontes anômalas. Já os espectrômetros, medem a intensidade e energia da radiação, possibilitando, assim, que a origem da radiação seja diagnosticada. A espectrometria de raios gama, dessa forma, é uma ferramenta poderosa para monitorar a radiação do ambiente (IAEA, 2003).

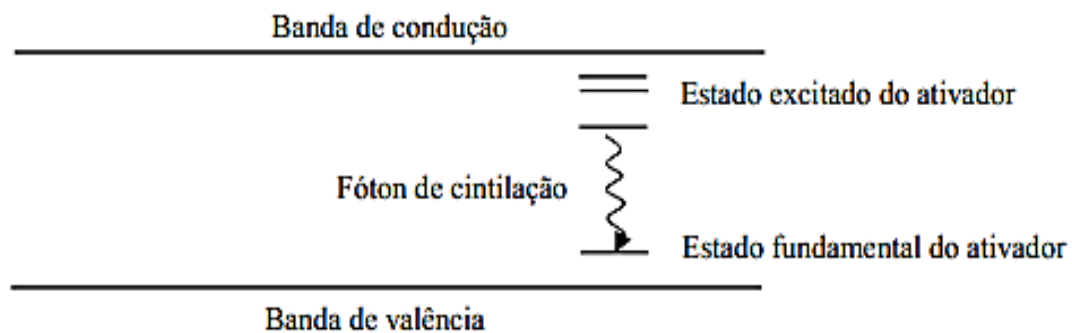
Vários campos da ciência utilizam os estudos obtendo dados a respeito desse tipo de radiação, a exemplo do mapeamento geológico, geoquímico e ambiental, possibilitando a interpretação das características regionais em grandes áreas. As pesquisas com raios gama são utilizadas tanto no mapeamento de solos quanto para a exploração mineral, podendo ser desenvolvidas para estimar e avaliar a dose de radiação terrestre para a população humana e para identificar áreas de risco potenciais de radiação natural. Por essa razão, podem ser usadas para delimitar áreas de risco do radônio atmosférico.

Já os levantamentos regionais, por serem mais localizados e feitos em uma área menor, proporcionam uma base para avaliar a contaminação feita pelo homem, tendo como exemplo as pesquisas regularmente realizadas ao redor de instalações nucleares, tais como centrais elétricas, para fornecer uma linha de base buscando identificar qualquer liberação acidental de substâncias radioativas. Pesquisas semelhantes são utilizadas para avaliar a contaminação nas áreas de mineração antiga e de áreas industriais. Os raios gama tem sido aplicados com êxito no mapeamento da precipitação radioativa advinda de acidentes nucleares e para localizar fontes radioativas perdidas (IAEA, 2003).

3.1 Detectores cintiladores

Há várias substâncias que cintilam no momento em que são incididas pela radiação ionizante, a exemplo do iodeto de sódio. Esses materiais são utilizados em detectores que transformam a luz visível, emitida pelos cintiladores, em um sinal elétrico. O detector de iodeto de sódio dopado com tálio [NaI(Tl)] é um detector inorgânico que cintila por conta da configuração dos estados de energia de seus elétrons, definidos pela sua rede cristalina. Nessa estrutura, os elétrons podem ser encontrados, unicamente, em algumas bandas discretas de energia, ilustradas na Figura 8, tendo a banda de valência, onde os elétrons encontram-se ligados, e a banda de condução, em que os elétrons podem movimentar-se. Entre essas duas bandas há a banda proibida na qual os elétrons não podem ser encontrados.

Figura 8 - Estrutura da banda de energia de um cristal cintilador ativado.



Fonte: KNOLL, 2000.

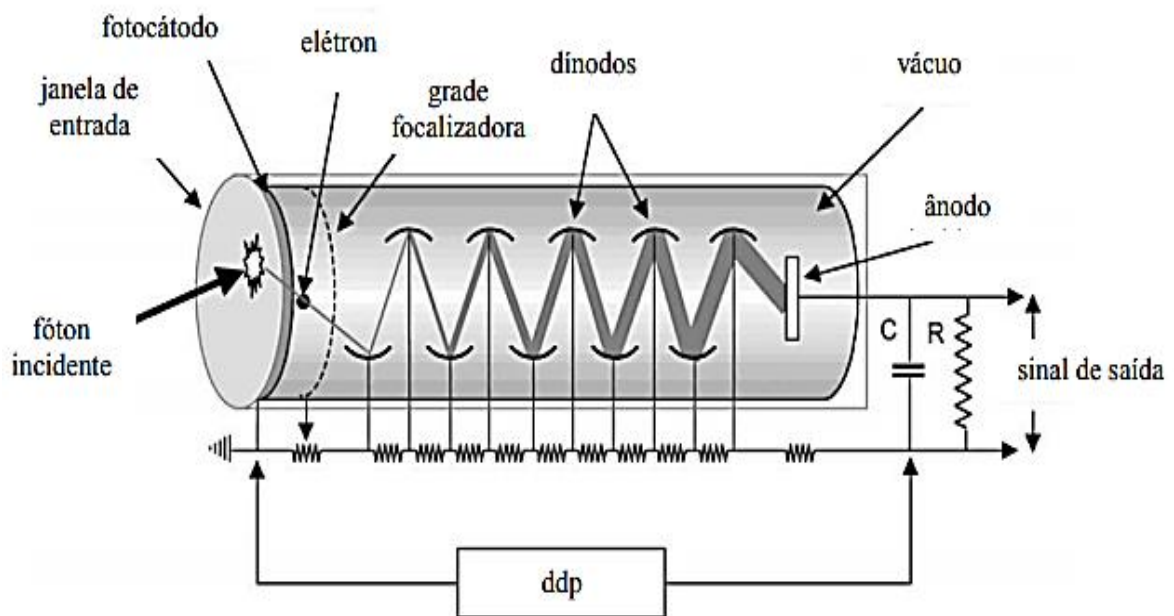
Na prática, no momento em que um fóton de raio X ou raios γ incide no material, pode ocorrer a emissão de um elétron primário. Elétrons secundários, os quais são espalhados pelo elétron primário, vão povoando a banda de condução, permitindo uma lacuna na banda de valência. Em cristais puros, a volta desses elétrons para a banda de valência é um processo ineficiente, pois o fóton que ele emite ao retornar para a banda de valência pode ser reabsorvido.

Por isso, uma diminuta quantia de impureza, nesse caso, o Tálio (Tl), denominada ativador, é adicionada, gerando sítios especiais na banda proibida, e nesse caso, o elétron sai da banda de condução para um nível abaixo emitindo um fóton e, logo após, ao sofrer uma nova queda de energia (perda de excitação) para uma banda acima da banda de valência, emite outro fóton. Tais fótons de cintilação não possuem energia suficiente para possibilitar a transição de um elétron da banda de valência para a banda de condução e, dessa forma, esses

fótons não são reabsorvidos no material, conseguindo percorrer grandes distâncias dentro do cristal (KNOLL, 2000).

A quantidade de fótons de cintilação produzida pelo NaI(Tl) é pequena (em torno de 38.000 fótons/MeV) e, por conta disso, são utilizadas fotomultiplicadoras que produzem um pulso de corrente elétrica quando nelas incide um pequeno sinal luminoso. Uma fotomultiplicadora, que possui o esquema representado na Figura 9, consiste, sucintamente, de um fotocátodo e dínodos. Ao receber o sinal luminoso, o fotocátodo ejeta elétrons que são acelerados por uma diferença de potencial (ddp) até o primeiro dínodo e, logo após essa colisão, mais elétrons são ejetados e direcionados ao segundo dínodo. Esse processo se repete ao longo da cadeia de dínodos até que os elétrons atinjam o ânodo da fotomultiplicadora, formando uma corrente elétrica com uma intensidade adequada para ser analisada (CHERRY, 2003).

Figura 9 - Esquema de uma fotomultiplicadora.



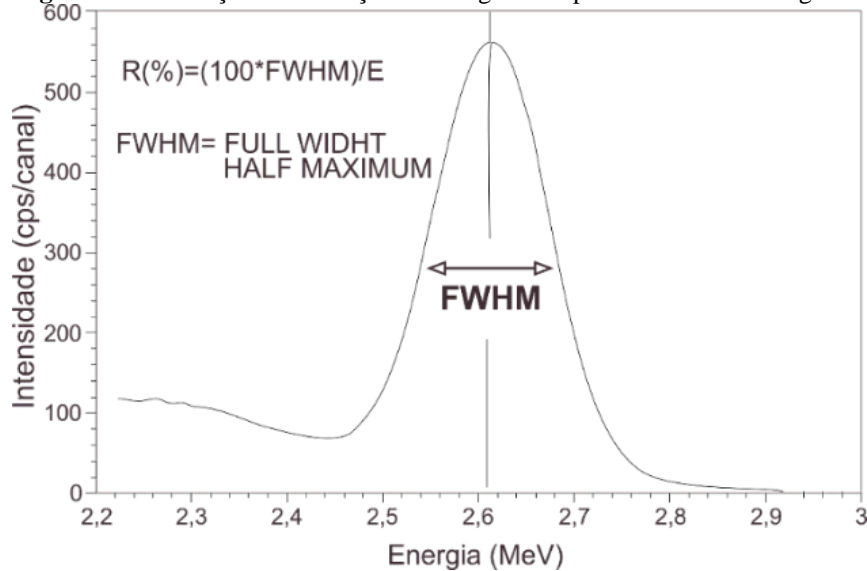
Fonte: adaptado de CHERRY, 2003.

3.1.1 Resolução em energia

A resolução de um detector é uma medida de sua capacidade em estabelecer dois picos que são próximos em energia, sendo geralmente determinada pelo emprego de uma fonte monoenergética, como pode ser observado na Figura 10 e equação 18. A resolução do

espectrômetro é definida como a largura total de um fotopico à meia altura da amplitude máxima (FWHM), expressa em porcentagem. (LIMA, 2006).

Figura 10 - Ilustração da resolução de energia do espectrômetro de raios gama.



Fonte: LIMA, 2006.

$$R(\%) = 100 \cdot \frac{FWHM}{H_0} \quad \text{Equação 18}$$

Sendo: $FWHM$ é a largura a meia altura e H_0 é o canal central do pico.

O parâmetro utilizado para classificar a resolução do detector é a largura total do fotopico quando este atinge a metade de sua máxima altura (FWHM). Se uma forma gaussiana padrão for assumida para o fotopico, a FWHM é dada por:

$$FWHM = 2\sigma\sqrt{\ln 2}$$

Equação 19

Onde: σ é o parâmetro de amplitude para a Gaussiana.

A alta resolução (FWHM pequena) não somente simplifica a definição individual dos picos próximos (muito justos), mas também faz a subtração do Compton contínuo menos incerto, por ser uma fração menor da atividade total na região do pico. A complexidade de um

espectro de raios gama faz com que seja desejável possuir a melhor resolução de energia possível.

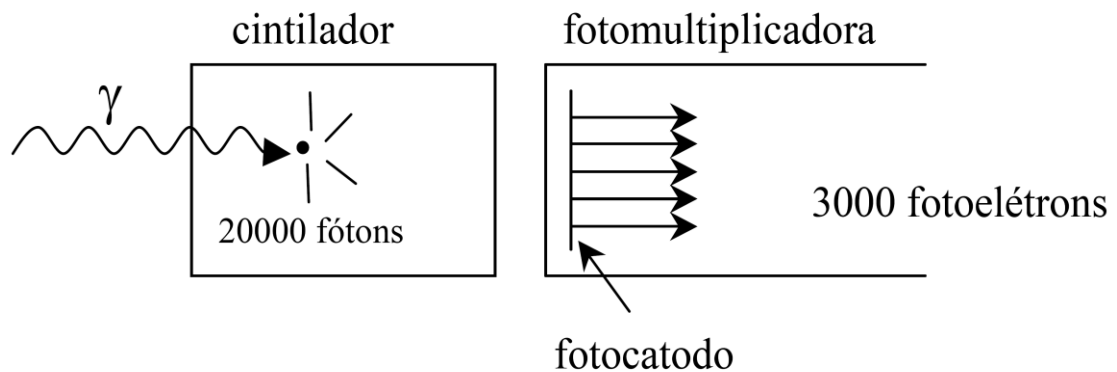
Há limites tecnológicos e naturais para medir a energia de um evento de detecção de raios gama que podem ser registrados pelo sistema detector. O limite natural que influi na precisão de energia advém, principalmente, das flutuações estatísticas associadas aos processos de produção de carga no meio do detector.

A totalidade da tensão dos pulsos de energia total pode também sofrer com efeitos eletrônicos, particularmente, os ruídos, pulsos de engavetamento, configurações impróprias de pólo-zero, etc. Tais efeitos eletrônicos tendem a ser menos importantes com as melhorias da tecnologia, porém, seus efeitos potenciais sobre a resolução devem ser considerados na configuração de um sistema de contagem (LIMA, 2006).

3.1.2 Produção de elétrons no fotocátodo da fotomultiplicadora

O detector $NaI(Tl)$ gera picos de energia total que são mais largos do que os observados para o germânio. A causa mais importante da largura do pico nos cintiladores é a flutuação estatística, que tende a ser mais significativa após a conversão das cintilações em elétrons no fotocátodo da fotomultiplicadora, a exemplo, do que ocorre no cintilador de $NaI(Tl)$, que tem a eficiência aproximada de 12%. Dessa forma, quando são produzidos 20.000 fótons de cintilação (Figura 11), apenas 15.000 interagem com o fotocátodo, criando cerca de 3.000 fotoelétrons, que é o menor sinal na cadeia de formação do pulso, pois nos estágios seguintes da fotomultiplicadora ele será amplificado.

Figura 11 - Eficiência da conversão de luz de cintilação em elétrons no fotocátodo.



Fonte: LIMA, 2006.

Relativamente à amplitude do sinal, este é produzido na fotomultiplicadora, sendo proporcional ao número de fotoelétrons. Para eventos repetidos, a mesma energia é depositada no cristal e a amplitude do pulso flutua devido a flutuação estatística do número de fotoelétrons coletados em cada evento.

Assumindo a estatística de *Poisson*, tem-se que o desvio padrão do número de fotoelétrons será a raiz quadrada do número médio produzido. Caso seja assumida a distribuição de *Gauss*, a *FWHM* será 2,35 vezes o desvio padrão. Em casos práticos, considera-se que *FWHM* é proporcional à raiz quadrada da energia do raio gama. A média da altura do pulso produzida é diretamente proporcional à energia do raio gama, isto é:

$$R = \frac{FWHM}{H_0} = \frac{K \cdot (E)^{1/2}}{E} = \frac{K}{(E)^{1/2}}$$

Equação 20

3.1.3 Fatores que interferem na perda de resolução

A perda de resolução de energia, de acordo com Lima (2006), pode ser também decorrente da:

- Resolução intrínseca do cristal: nos cintiladores modernos esse efeito é menor do que 2%, maiores flutuações aparecendo por causa da condição de reflexão que existe na superfície do cristal. A não uniformidade na eficiência de coleta de luz pode introduzir um alargamento do pulso, especialmente para grandes detectores.
- Variância introduzida pela fotomultiplicadora: pode ter uma contribuição significativa a uniformidade de coleta dos fotoelétrons pelo fotocátodo, assim como a flutuação estatística da multiplicação dos elétrons. Existe uma considerável variação na performance de diferentes tipos de fotomultiplicadoras.

O componente mais tênue da resolução intrínseca do cristal dá-se pela não linearidade da resposta do cintilador de *NaI(Tl)*. Caso todos os raios gama incidentes interajam e se toda a sua energia for convertida para um único elétron, essa não linearidade não será uma fonte de perda de resolução. No entanto, a radiação incidente pode interagir e gerar dois ou mais elétrons secundários através de um único ou múltiplos espalhamentos Compton seguidos pela absorção fotoelétrica. Além disso, mesmo se ocorrer uma simples absorção fotoelétrica, o átomo que fica excitado pode converter a sua energia de excitação na forma de elétron *Auger*.

Por consequência, um fluxo de fótons incidentes monoenergéticos permitirá uma grande distribuição de energia dos elétrons dentro do cristal. Caso a resposta do cristal não seja linear em relação à energia dos elétrons, o rendimento total de luz será diferente de evento para evento, a depender dos detalhes de subdivisão de energia dos vários elétrons que são produzidos (LIMA, 2006).

Esses efeitos são significativos para energias de raios gama de poucas centenas de keV, para os quais as múltiplas interações são predominantes. Tornou-se convencional usar o ^{137}Cs (0,662 MeV) como padrão para relacionar o número de canais com a energia. A resolução para detectores cilíndricos de NaI(Tl) é cerca de 6 a 7 %. Se a forma do cristal não for cilíndrica, a maior dificuldade de coleta de luz torna pior a resolução.

3.1.4 Iodeto de sódio

O cristal de NaI(Tl) é sensível à radiação caso seja submetido por longo tempo a altas exposições, o que leva a uma degradação na performance da cintilação, pois, observa-se danos para níveis de radiação maiores do que 1 *Gray* (100 *rad*). Portanto, o cristal não deve ser exposto à radiação ultravioleta de lâmpadas fluorescentes ou similares (LIMA, 2006).

O cristal de NaI é ativado com a adição de concentração muito baixa de tálio (Tl), aproximadamente 0,094 gramas, para um cristal de 2 polegadas de diâmetro por 0,25 polegadas de comprimento, tendo seu peso total de 47,24 gramas. O iodeto de tálio como material químico puro é tóxico, pois, em quantidade superior a 1 grama pode ocasionar a morte do indivíduo. Caso o compartimento seja danificado, deve-se manusear com luvas de borracha e retornar o detector danificado para o “fabricante” ou guardar em local apropriado, de acordo com regulamentações federais.

De acordo com Lima (2006), o cintilador é um cristal que tem a capacidade de transformar a energia depositada pela radiação em fótons de luz através de processos luminescentes, que podem ser classificados como:

- **fluorescência:** é quando a emissão de luz ocorre *durante a excitação* num tempo menor que 10^{-8} segundos;
- **fosforescência:** é o caso de quando a emissão de luz ocorre *depois de cessada a excitação* (depois de 10^{-8} segundos), geralmente, tardia e com comprimento de onda maior;
- **fluorescência atrasada:** é quando a emissão ocorre *muito tempo após a excitação* e no mesmo espectro da fluorescência;

Relativamente ao material cintilador ideal, este deve possuir as seguintes propriedades:

- Converter a energia cinética das partículas carregadas em luz com alta eficiência de forma linear, devendo a luz produzida, ser proporcional à energia depositada;
- Para uma boa coleta de luz, o meio deve ser transparente à luz emitida;
- Tempo de decaimento da luminescência: o menor possível;
- Material de boa qualidade ótica;
- Índice de refração próximo ao do vidro, a fim de permitir a eficiente união do cintilador de luz com o tubo fotomultiplicador;
- Pode ser concebido em diferentes tamanhos e formas.

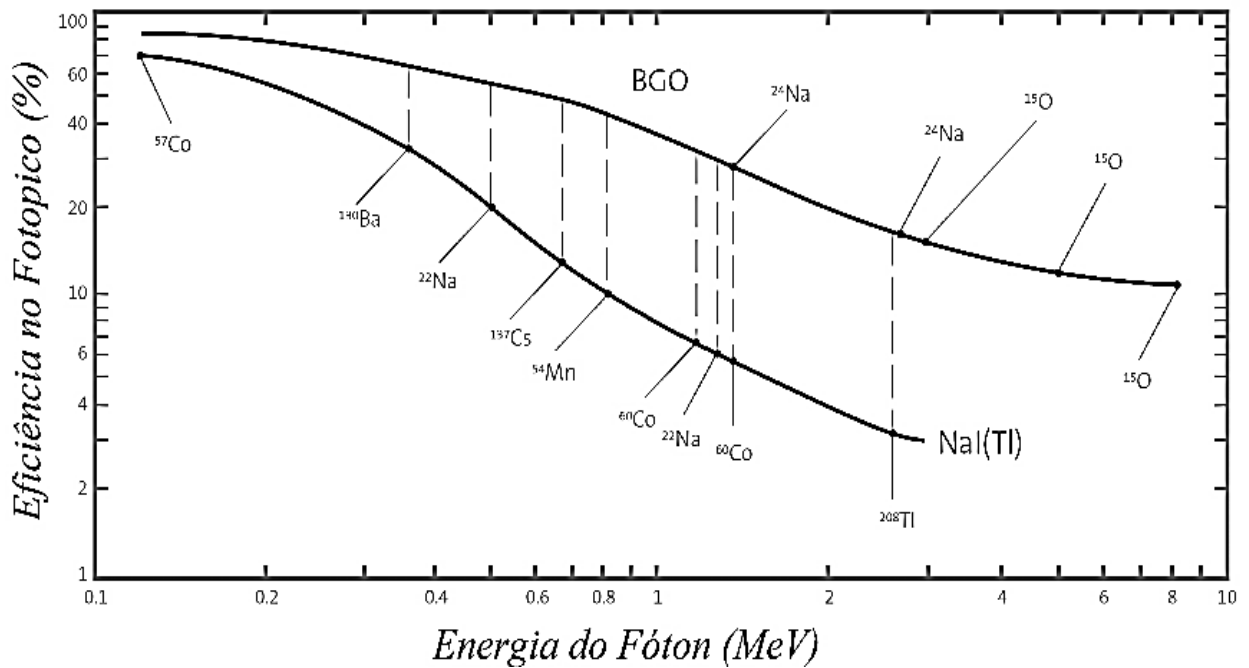
3.2 Detectores de Germanato de Bismuto (BGO)

O detector BGO desde o final da década de 70 passou a ser utilizado em um grande número de aplicações. O *BGO* foi fabricado e comercializado para fornecer maiores taxas de contagem que o *NaI*, o que resulta em uma melhor precisão. Ele oferece a opção de aquisição de dados de forma mais rápida e de melhor precisão estatística em estimativas de tório, urânio e potássio. Uma das principais vantagens do *BGO* é a sua alta densidade ($7,3 \text{ g/cm}^3$), além do elevado número atômico do bismuto, possibilitando que o detector tenha maior probabilidade de interação por volume entre os mais comumente utilizados (TAUHATA et al., 2014).

Ao se comparar com o iodeto de sódio, constata-se, além disso, boas propriedades mecânicas e de resistência à umidade. Quanto às principais desvantagens do cristal de *BGO*, ressalta-se a baixa produção de luz (aproximadamente 10 a 20% daquela produzida em iguais condições pelo iodeto de sódio) e seu custo, que é duas a três vezes maior (TAUHATA et al., 2014).

Em geral, altas taxas de contagem (Figura 12) e a melhor qualidade de picos-Compton espectrais compensam a principal limitação do BGO, sua baixa resolução intrínseca. O BGO por vezes proporciona melhor precisão do que cristais de *NaI* com o mesmo tamanho (volume) na estimativa de concentrações de elementos a partir da análise de espectros de raios gama induzidos pela captura de nêutrons. O BGO também pode sofrer problemas devido ao empilhamento de pulsos.

Figura 12 –Eficiência de fotopico para diferentes energias de emissão gama para o *NaI(Tl)* e *BGO*.

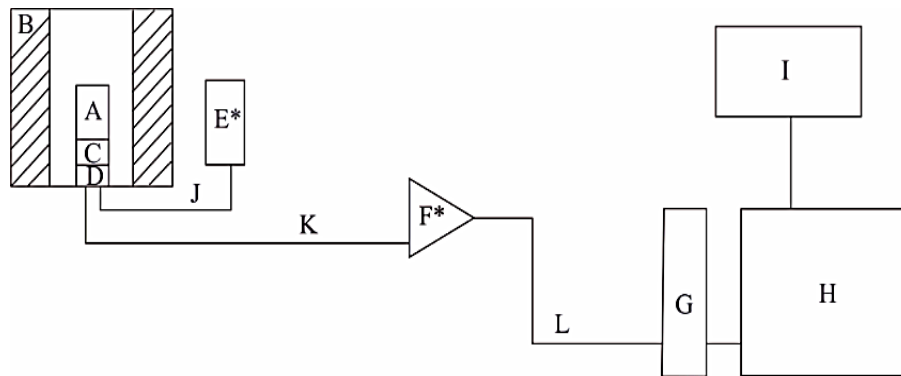


Fonte: SGC, 2004.

3.3 Espectros em analisadores multicanais

A amplificação do sinal elétrico da fotomultiplicadora é realizada por circuitos eletrônicos que produzem um pulso com amplitude proporcional ao número de fótons de cintilação. Tal pulso é transmitido para um conversor analógico-digital (CAD), o qual converte a amplitude dos sinais analógicos de entrada em números inteiros binários proporcionais à amplitude do pulso. Esses números são enviados a um analisador multicanal (AMC), os quais produzem um histograma dos pulsos de entrada em que o eixo das abscissas corresponde à amplitude dos pulsos e o eixo das ordenadas ao número de eventos para cada amplitude digitalizada. Esse histograma é armazenado em um computador para uma posterior análise. A Figura 13 ilustra um esquema do sistema que produz o histograma (KAKOI, 2013).

Figura 13 - Esquema de sistema gamaespectrométrico empregando analisador multicanal.

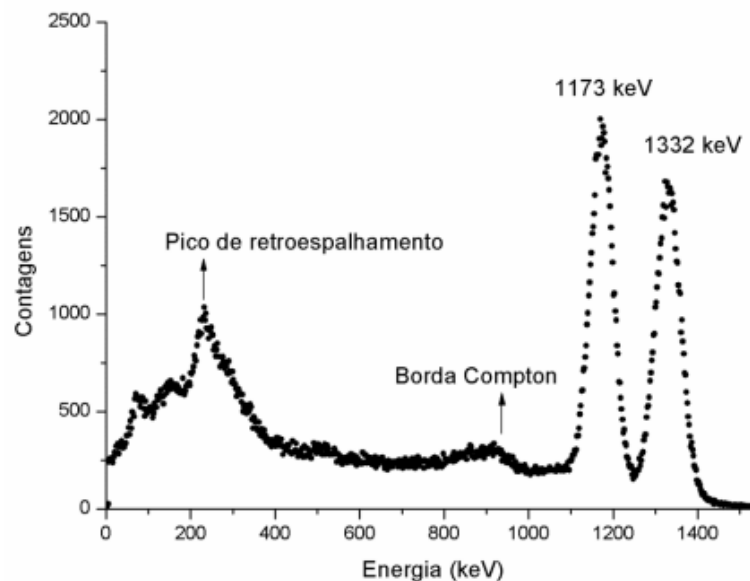


- A - Cristal de NaI(Tl) 3"x 3"
- B - Blindagem de chumbo
- C - Fotomultiplicadora
- D - Pré-amplificador
- E - Fonte de alta tensão (1000V)
- F - Amplificador ORTEC (modelo 485)
- G - Placa ASPEC MCA ORTEC (modelo 927)
- H - Microcomputador
- I - Impressora
- J, K e L - Cabos
- * NIM BIN para polarizar unidades

Fonte: DUARTE e BONOTTO, 2002.

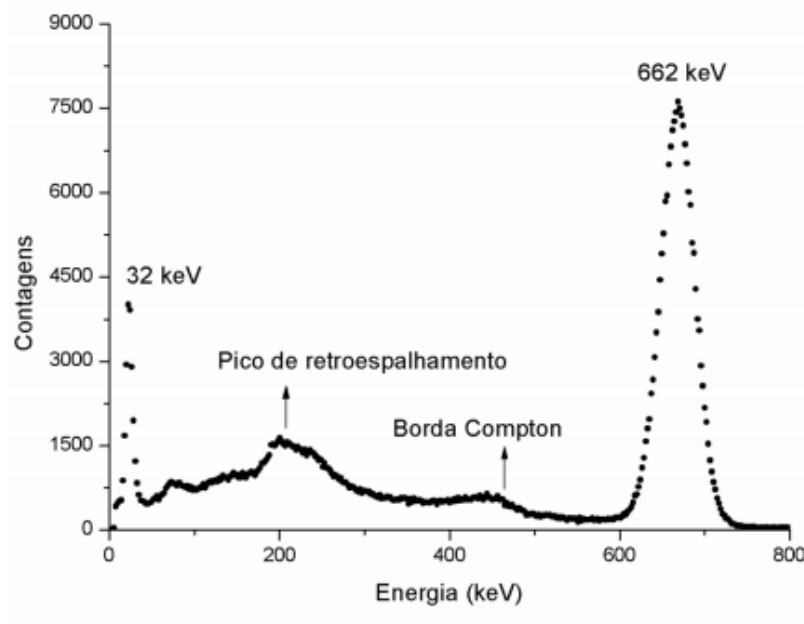
De forma resumida, os espectros de emissão gama são os histogramas obtidos pelos detectores de NaI(Tl) e alguns exemplos para fontes de ^{60}Co e ^{137}Cs são mostrados nas Figuras 14 e 15.

Figura 14 - Espectro de emissão gama experimental obtido pelo detector de NaI(Tl) de 20,32 cm de diâmetro e 10,16 cm de altura para uma fonte de ^{60}Co sem um simulador antropomórfico.



Fonte: KAKOI, 2013.

Figura 15 - Espectro de emissão gama experimental pelo detector de NaI(Tl) de 20,32 cm de diâmetro e 10,16 cm de altura para a fonte de ^{137}Cs sem um simulador antropomórfico.



Fonte: KAKOI, 2013.

3.4 Resposta de detectores comerciais

Há inúmeros modelos de detectores, os quais são fabricados e comercializados por empresas, com dimensões diversas, eficiência de detecção de vários valores e configurações do tipo axial, horizontal, em formato de “J”, tipo poço e até portáteis (IAEA, 2014).

Nas medições de raios gama em que há o uso de cintiladores de NaI(Tl), os dados de saída dos detectores são espectros de altura de pulso, os quais correspondem a informações distorcidas a respeito da fonte de radiação por conta de vários erros associados ao processo de cintilação no cristal e à eletrônica associada, ao invés de espectros de energia de fótons. Os espectros de altura de pulso são relacionados aos espectros de energia reais por meio da função resposta do detector cintilador de NaI(Tl) (VILLA e COSTA, 2014).

Para baixas energias, o espectro do raio gama incidente, em que a produção de pares não é significativa, consiste em um contínuo Compton e um fotopico. A área relativa do fotopico aumenta conforme a energia do fóton incidente decresce. Para energias menores que 100 keV, o contínuo Compton pode efetivamente desaparecer, já para energias médias, a possibilidade de múltiplo espalhamento seguido de um escape do último fóton espalhado

permite que a energia total depositada seja maior que a energia depositada por apenas um único espalhamento com escape do fóton espalhado.

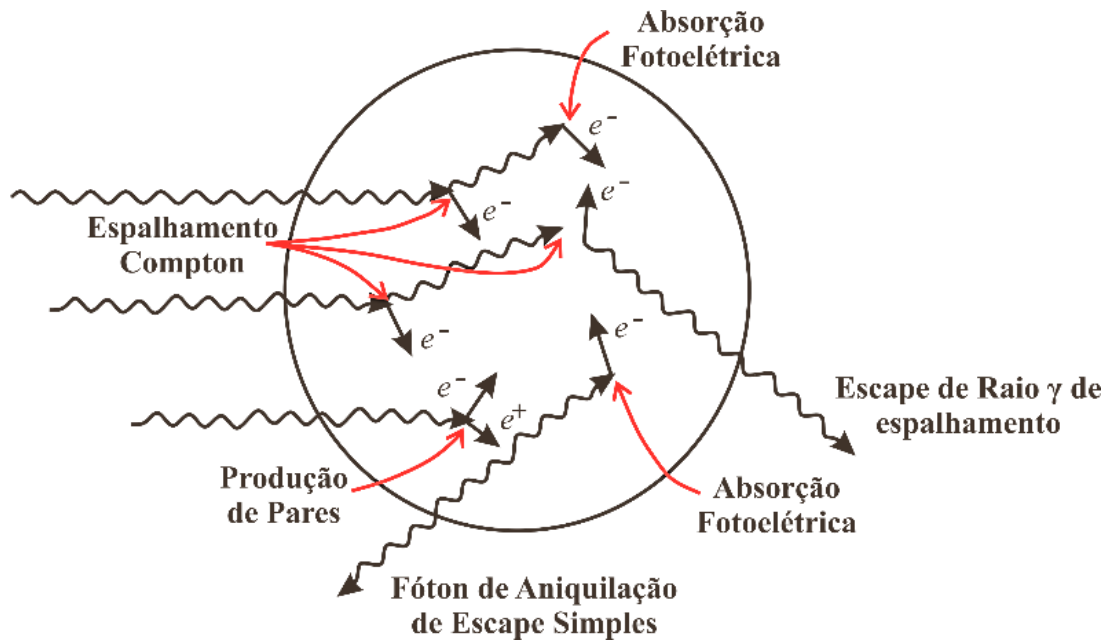
Os eventos múltiplos citados acima podem ocupar o *gap* entre a borda Compton e o fotopico, dessa maneira, podendo distorcer a forma do contínuo prevista para um único espalhamento. Caso a energia do raio gama incidente seja grande para a produção de pares, os fótons de aniquilação podem escapar ou sofrer alguma interação dentro do detector. Se ambos os fótons de aniquilação escaparem sem que haja uma interação, será formado o pico de escape duplo, podendo ocorrer apenas um fóton de aniquilação escape e o outro sendo totalmente absorvido, contribuindo, dessa forma, para que apareça o pico de escape simples no espectro com energia $h\nu - m_0c^2$. Outras possibilidades existem para que um ou dois fótons de aniquilação possam perder parte da sua energia por espalhamento Compton e depois escapar.

Quanto à função resposta para um detector real de raios gama, esta depende do tamanho, da forma, da composição do detector, além dos detalhes geométricos das condições de irradiação. Algumas propriedades da função resposta, geralmente, são interessantes em espectrometria. Já a fração de fótons é definida como a razão entre a área do fotopico (ou do pico da energia total) e a área abaixo de toda a função resposta. Essa é uma medida direta da probabilidade do raio gama depositar dentro do detector toda a sua energia por qualquer processo.

Os picos de escape duplo (ou simples) são parte da função resposta podendo, em alguns casos, tornam-se maior que o fotopico. A razão entre a área do pico de escape simples ou duplo e a área do fotopico é uma propriedade da função resposta que pode ajudar a interpretar espectros complexos.

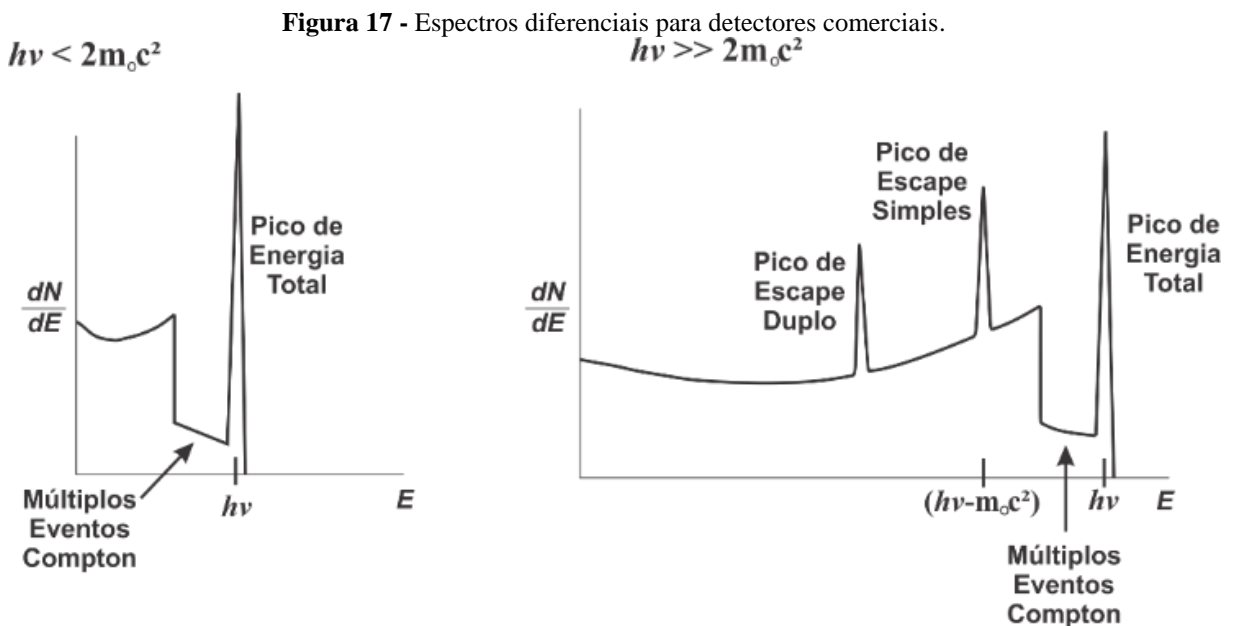
Para o caso dos detectores comerciais, a Figura 16 ilustra as interações que podem afetar a função resposta do detector para baixas, médias e altas energias dos raios gama incidentes (LIMA, 2006).

Figura 16 - Interações na função resposta do detector.



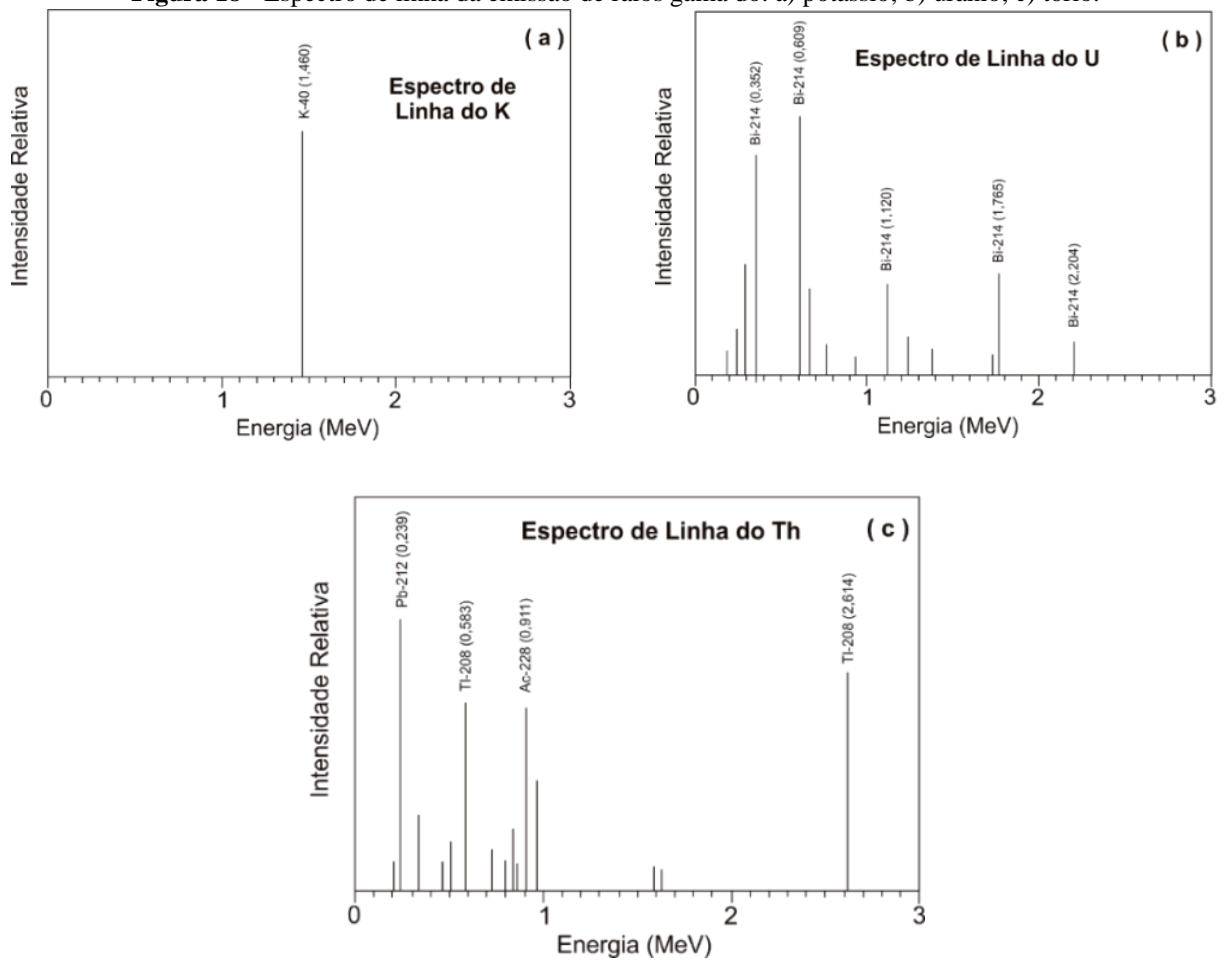
Fonte: KNOLL, 1979.

A Figura 17 ilustra o comportamento de detectores comerciais (espectros diferenciais) para os diferentes níveis de energia do fóton incidente. Na Figura 18 estão ilustrados espectros de linha para potássio, urânio e tório.



Fonte: Knoll, 1979.

Figura 18 - Espectro de linha da emissão de raios gama do: a) potássio; b) urânio; c) tório.



Fonte: LIMA, 2006.

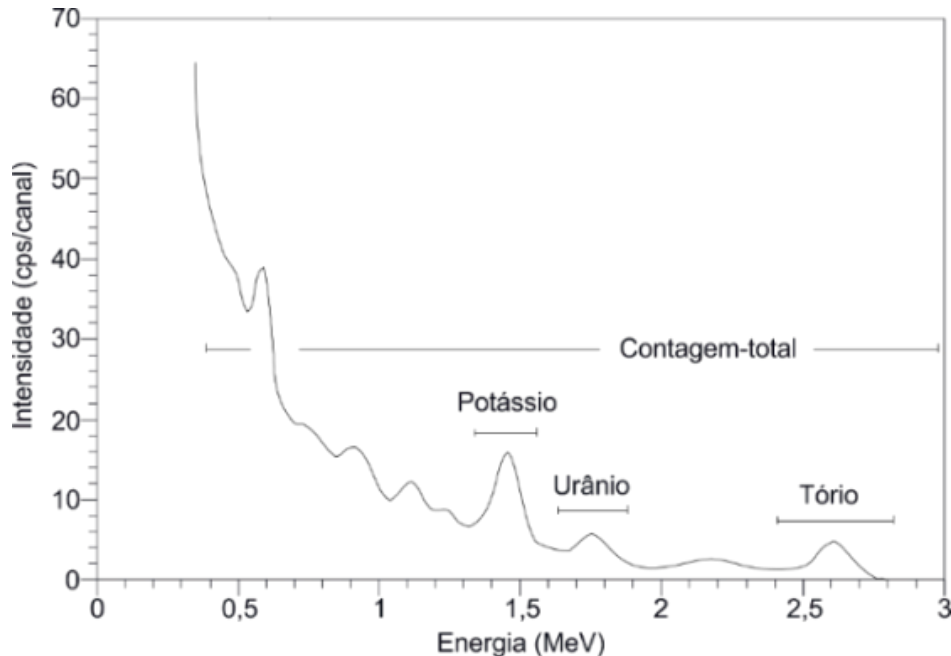
3.5 Geometria fonte-detector

A espessura da fonte possui efeito significativo na forma de espectros observados, pois, conforme o aumento da espessura da fonte ocorre o acúmulo do espalhamento Compton contínuo, por conta da dispersão nas fontes. Os fotopicos são, então, reduzidos em relação ao Compton de fundo. Isto porque os fótons de baixa energia são mais facilmente atenuados do que os fótons de grande energia. Este efeito é mais pronunciado em menores energias (LIMA, 2006).

Já a radiação terrestre é tanto atenuada na fonte quanto pelo material entre a fonte e o detector. A forma do espectro observado depende da quantidade de material atenuante entre a fonte e o detector. Com o aumento da atenuação, são reduzidos os fotopicos em relação à energia contínua. Espectros medidos são, portanto, funções da concentração e da geometria da

fonte, da altura do detector acima do solo/rocha, da espessura de qualquer sobrecarga não-radioativa e da função de resposta do detector (Figura 19) (LIMA, 2006).

Figura 19 - Espectro de raios gama típico de detector de NaI(Tl) mostrando a posição das janelas de energia convencionais.



Fonte: LIMA, 2006.

3.6 Eventos que interferem na função resposta do detector

3.6.1 Escape de elétrons secundários

Caso o detector não seja grande em comparação com o alcance dos elétrons secundários, uma fração significativa dos elétrons pode escapar do detector, ocasionando a não coleta dessa energia, de maneira que a forma do contínuo Compton será alterada a favor das menores amplitudes (LIMA, 2006).

Como alguns eventos do fotopico serão perdidos, então, a *photofraction* será reduzida em comparação com o caso onde não há escape de elétrons.

3.6.2 Escape de raio-X característico

Na maioria das vezes, a energia do raio-X é reabsorvida, embora a absorção fotoelétrica pode ocorrer perto da superfície do detector, logo, o raio-X pode escapar. Assim,

a energia que foi depositada no detector diminui por conta da quantidade de energia do raio-X que escapou. Um novo pico aparecerá na função resposta e será localizado a uma distância igual à energia de escape do raio-X característico. Esses picos são chamados picos de escape de raio-X e são mais evidentes para baixas energias de raios gama incidentes e para detectores cuja razão *superfície-volume* é grande (LIMA, 2006).

3.6.3 Interações secundárias criadas pelo decaimento radioativo

3.6.3.1 Radiação de aniquilação

Caso a fonte de raios gama consista em um radionuclídeo que decai pela emissão de pósitron, um pico adicional de 0,511 MeV no espectro é esperado, por conta dos fótons de aniquilação que são criados. A maioria dos processos monitorados possuem materiais com espessura suficiente para frear todos os pósitrons, os quais vão se aniquilando na região imediatamente envolvida no processo. Essa região, produz 0,511MeV de radiação de aniquilação, a qual será adicionada ao espectro gama esperado pelo decaimento dos radionuclídeos associados ao processo (LIMA, 2006).

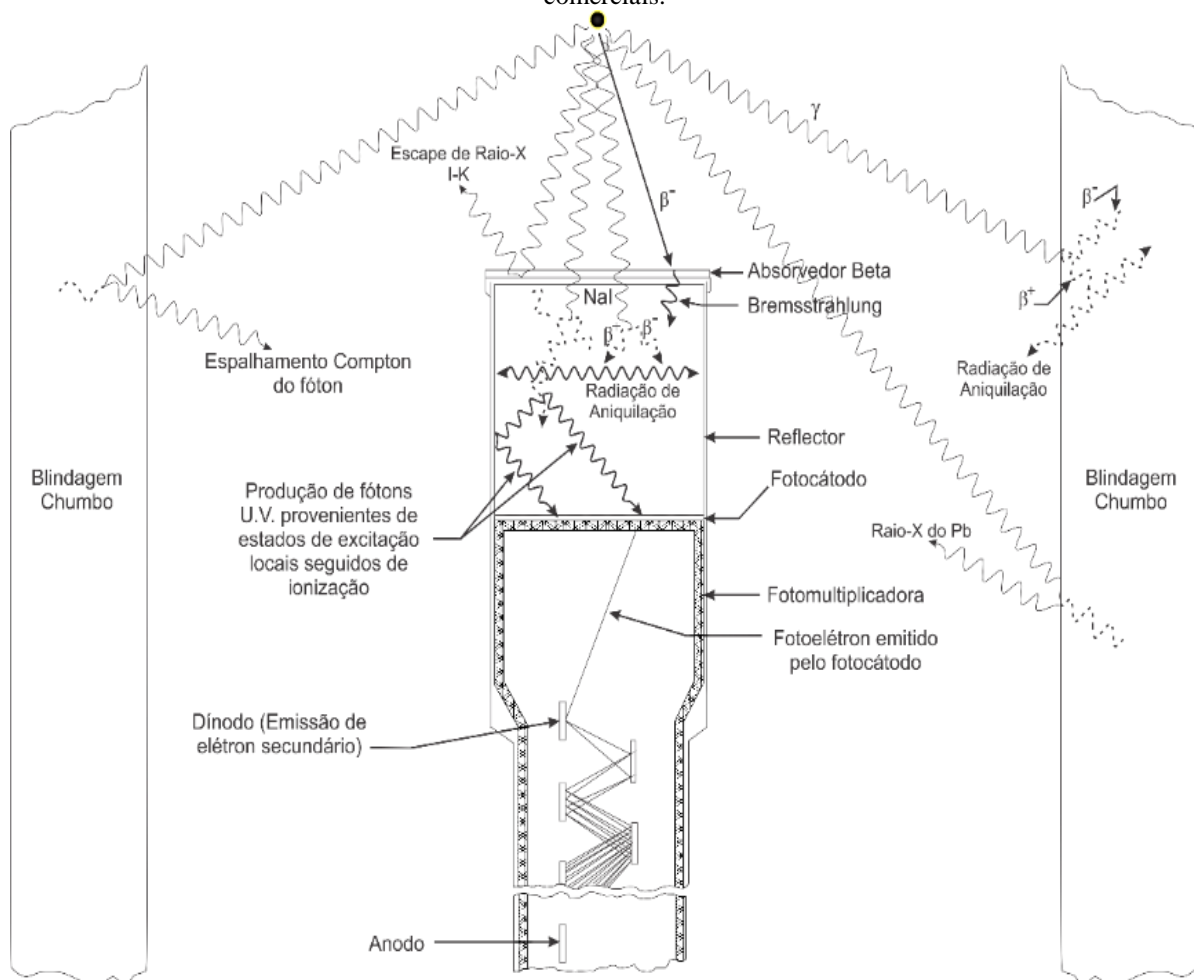
3.6.3.2 *Bremsstrahlung*

As fontes mais comumente usadas de raios gama decaem por β^- , necessitando de um material externo que é usado na prevenção das partículas betas que depositam a sua energia no detector, complicando o espectro gama. Na absorção, entretanto, algumas radiações secundárias na forma de *Bremsstrahlung* serão geradas e poderão interagir com o detector, contribuindo para o espectro. O espectro de *Bremsstrahlung* pode ter energia máxima igual à energia da partícula beta, porém existe a possibilidade de energias menores. Como o espectro de *Bremsstrahlung* é contínuo, ele não cria novos picos, mas adiciona um contínuo em todo o espectro, superpondo valores. Essa contribuição não pode ser subtraída como o *background*, logo, a inclusão pode causar erros quantitativos na medida das áreas dos picos. Visando minimizar esse efeito, o uso de absorvedores de beta com baixo número atômico como o berílio é sempre recomendado (LIMA, 2006).

3.6.3.3 Efeitos dos materiais envoltórios

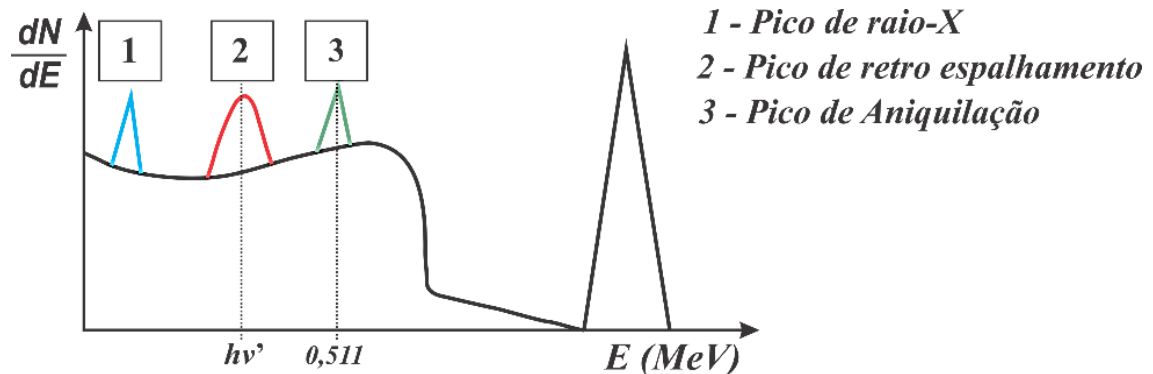
Para situações práticas, o detector utilizado na espectrometria gama é envolto por outro material que pode interagir na resposta. O detector é encapsulado visando criar uma barreira contra umidade e luz ou é construído com uma estrutura a vácuo. A redução do *background* natural, na maioria dos detectores gama é feita com blindagem. Todos esses materiais usados nas blindagens são fontes potenciais de radiação secundária. Caso a radiação secundária interaja com o detector, esta pode influenciar na forma do espectro. Algumas possibilidades são mostradas na Figura 20 (LIMA, 2006). Já a influência dos materiais circunvizinhos na resposta do detector é mostrada no espectro de energia apresentado na Figura 21.

Figura 20 - Alguns tipos de interações secundárias que podem interferir na função resposta dos detectores comerciais.



Fonte: KNOLL, 1979.

Figura 21 - Influência da radiação secundária na resposta do detector.



Fonte: KNOLL, 1979.

4. CALIBRAÇÃO DOS GAMAESPECTRÔMETROS

Os mais modernos gamaespectrômetros são conhecidos como espectrômetros diferenciais, possuindo, geralmente, no mínimo, detectores de NaI(Tl) de 350 cm³, registrando entre 1024 – 2048 *canais* de dados na faixa de energia 0 – 3 MeV. A estabilização automática de espectro pode ocorrer através um pico de baixa energia de um radionuclídeo de referência (em geral, ¹³⁷Cs com 0,662 MeV), ou por meio de um dos picos de radionuclídeos naturais, como o ⁴⁰K (1,46 MeV) ou ²⁰⁸Tl (2,62 MeV).

Alguns modelos de instrumentos tem a possibilidade de gravar o espectro completo, e, além disso, conseguem somar canais sobre as janelas de energia ampla, o que é usado para a estimativa *in situ* das concentrações de K, U e Th. As constantes de calibração utilizadas nesse processo são armazenadas na memória do instrumento. Alguns modelos, como o *Digidart* da empresa EG&G ORTEC e o RS 230 da empresa *Radiation Solutions*, permitem que várias medições de campo sejam gravadas na memória do instrumento, bem como os espectros de energia. O uso de cristais de cintilação de grande volume e intervalos de amostragem de vários minutos fornecem precisão aceitável para análises quantitativas (BARBOSA, 2016).

Empregou-se, nesse trabalho, 4 gamaespectrômetros, sendo dois portáteis, um possuindo o detector de BGO, fabricado pela empresa *Radiation Solutions*, modelo RS 230 (Figura 22) e, o outro, de iodeto de sódio (NaI(Tl)), da empresa EG&G ORTEC e modelo *Digidart* (Figura 23). Os outros dois espectrômetros utilizados são ambos de bancada, possuem um cristal de NaI(Tl) de 3'' × 3'', sendo também fabricados pela EG&G ORTEC, diferindo em sua geometria de aquisição dos dados da amostra, sendo um de geometria planar

(Torre) e, o outro, com a geometria vazada (Poço) (Figura 24). O arranjo experimental para a realização das medidas com o espectrômetro portátil *Digidart* está ilustrado na Figura 25. É importante ressaltar que, para reduzir a incidência de radiação de fundo (*background*) no detector de NaI(Tl) do *Digidart*, foram confeccionados anéis de chumbo como também ilustrado na Figura 25. O arranjo experimental para a realização das medidas com os espectrômetros de bancada de NaI(Tl) nas geometrias planar e vazada está ilustrado na Figura 26.

Figura 22 - Espectrômetro BGO.



Fonte: PEO, 2014.

Figura 23 – Foto do detector portátil e do equipamento *Digidart*.



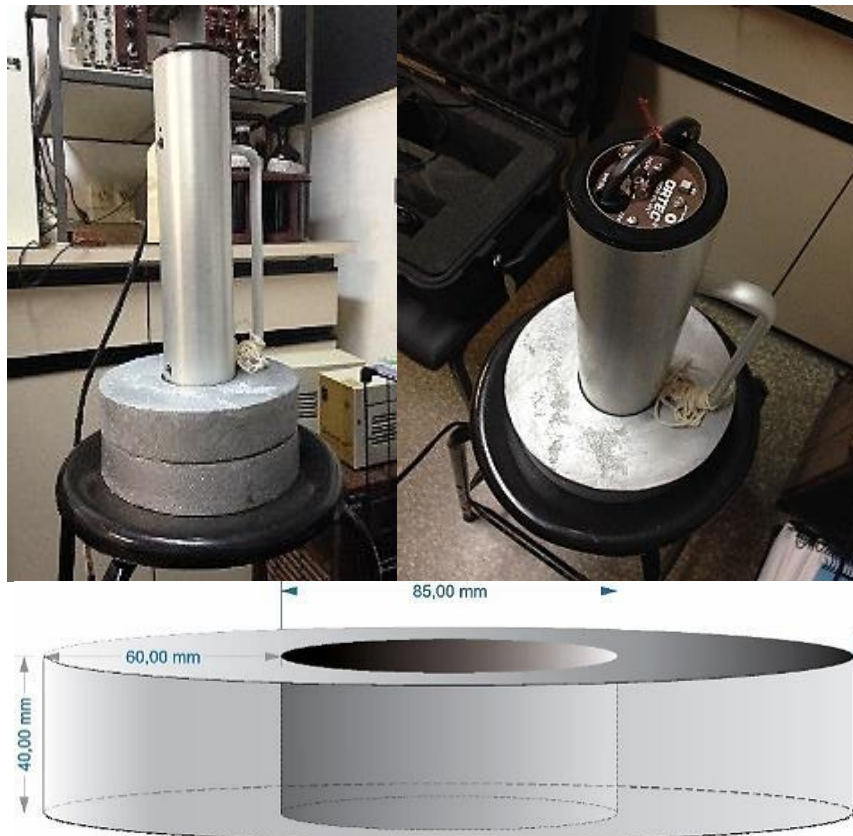
Fonte: Autoria própria.

Figura 24 - Detectores de NaI(Tl) de bancada tipo Torre (acima) e Poço (embaixo).



Fonte: Autorial própria.

Figura 25 - Espectrômetro portátil *Digidart* e anéis de blindagem.



Fonte: BARBOSA, 2016.

Figura 26 - Espectrômetros de bancada Torre (à esquerda) e Poço (à direita).



Fonte: Autoria própria.

Para realizar a leitura das amostras de interesse neste trabalho visando à aquisição dos dados, faz-se necessária a calibração dos equipamentos e determinação do *background*. Empregaram-se padrões com concentrações conhecidas dos radionuclídeos de interesse, identificados nas Tabelas 1 e 2, com tempos de leitura similares (30.000 segundos) para os

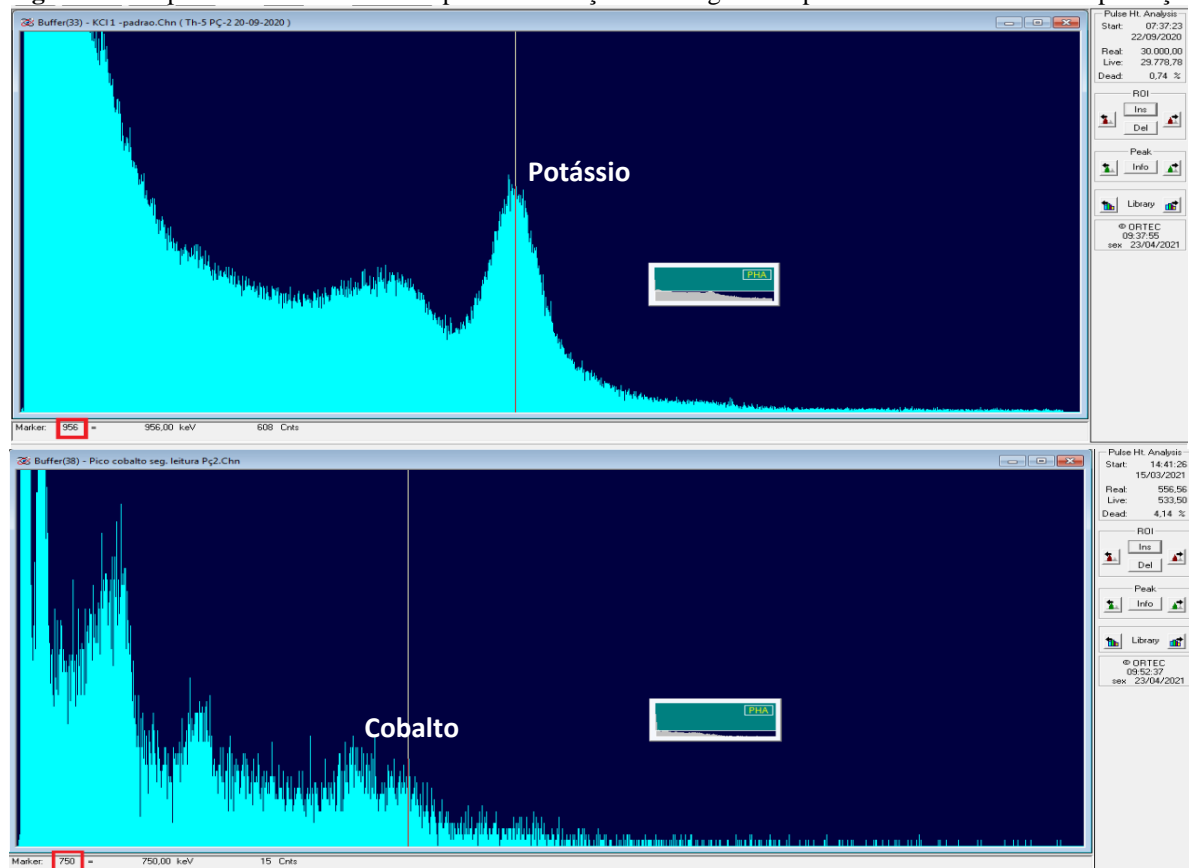
radioelementos Urânio, Tório e Potássio no caso do detector Poço. Já para o espectrômetro portátil *Digidart*, o tempo de leitura dos padrões oscilou de 956,66 até 10583,88 segundos. Fez-se uso de fontes emissoras de radiação gama de energia conhecida para a localização dos canais associados aos fotopicos e calibração em energia dos gamaespectrômetros.

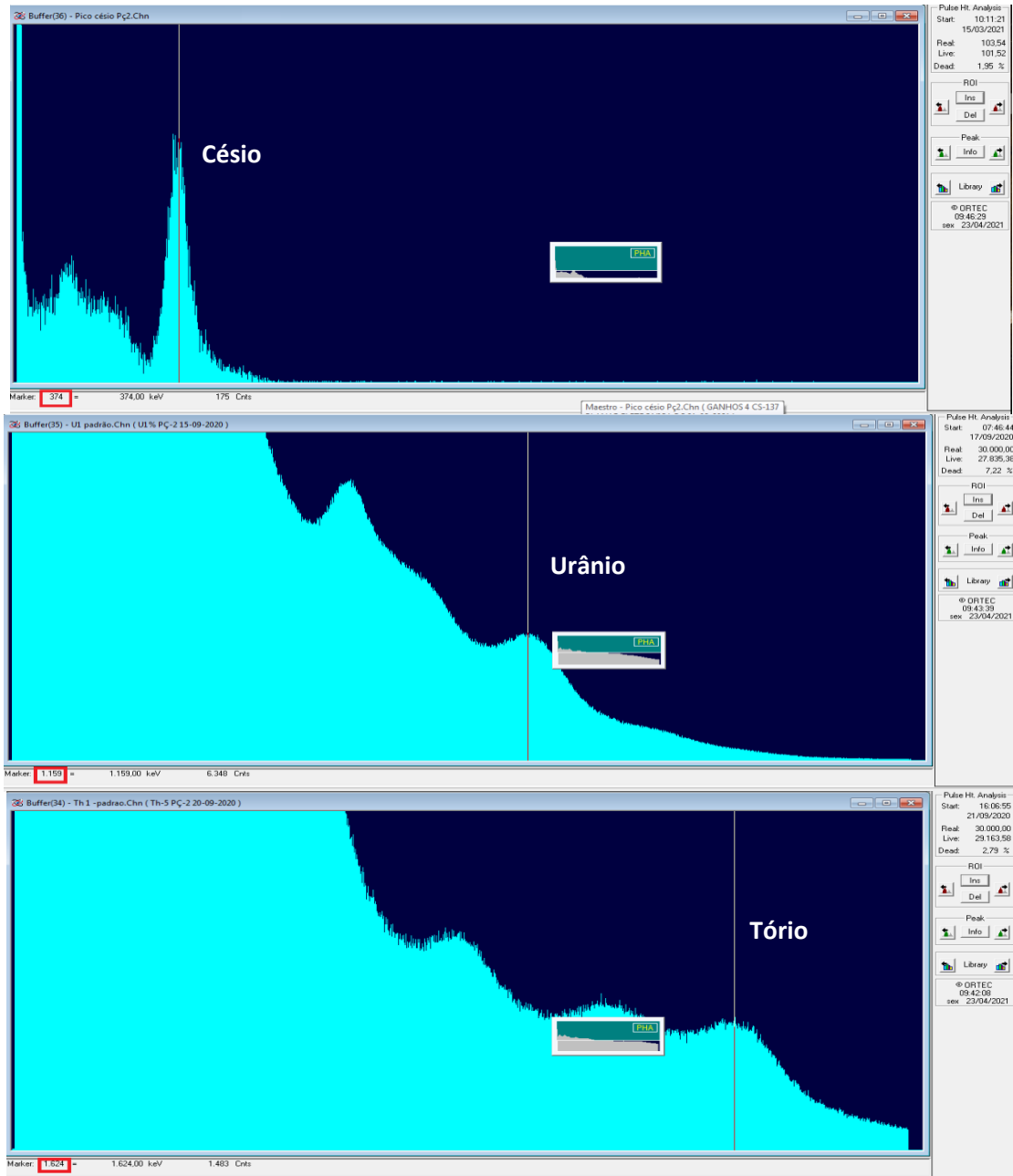
Para o detector Poço, fez-se uso de fontes de ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{40}K (KCl), pechblenda (U-1, ^{214}Bi) e areia monazítica (Th-1, ^{208}Tl) para a localização dos canais associados aos fotopicos e calibração em energia dos gamaespectrômetros. Os espectros obtidos estão ilustrados na Figura 27. Na Tabela 1 constam os canais associados às respectivas energias das fontes utilizadas e na Figura 28 a curva de calibração em energia.

Tabela 1 - Canais de pico e energia associada aos radionuclídeos utilizados na calibração do detector tipo Poço.

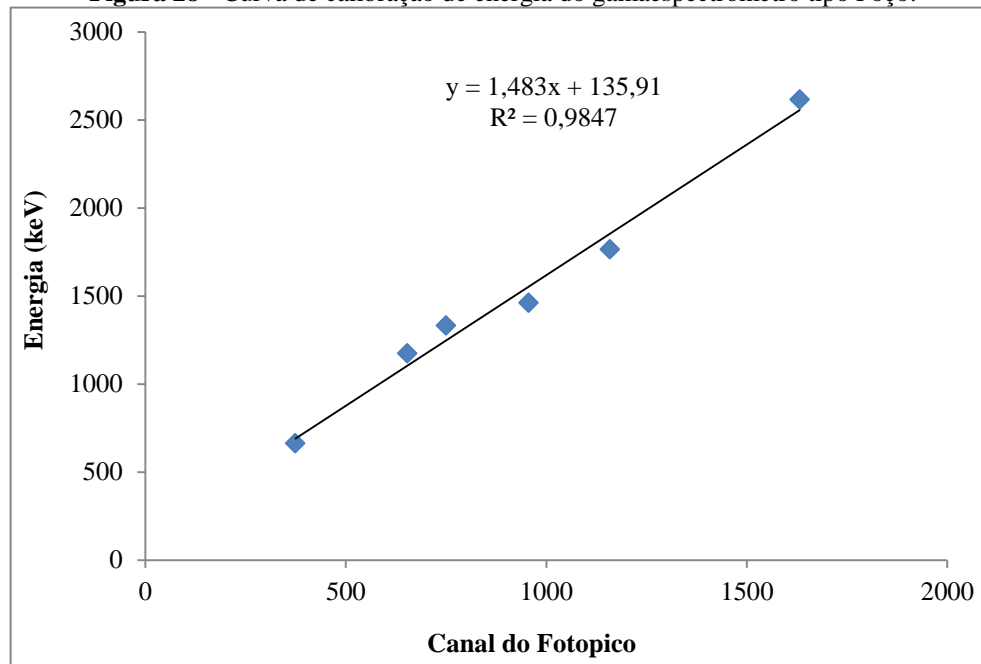
Radionuclídeo	Canal Pico	Energia (keV)
^{137}Cs	374	661,66
^{60}Co	653	1173,24
^{60}Co	750	1332,50
^{40}K	956	1460,75
^{214}Bi (eU)	1159	1764,49
^{208}Tl (eTh)	1632	2615

Figura 27 - Espectros das fontes usadas para a calibração de energia no espectrômetro com detector tipo Poço.





Fonte: Autoria própria.

Figura 28 - Curva de calibração de energia do gamaespectrômetro tipo Poço.

Fonte: Autoria própria.

Para a calibração em concentração dos gamaespectrômetros, utilizaram-se padrões adquiridos junto ao “*New Brunswick Laboratory*” do “*U.S. Department of Energy*”, Argonne, Illinois, Estados Unidos. Todos os padrões de urânio são de pechblenda, cujos códigos daqueles utilizados na calibração do *Digidart* consistem em NBL-102-A, NBL-104-A e NBL-105-A e, para o detector Poço, adicionou-se também o padrão NBL-101-A. Posteriormente à leitura destes, determinou-se a taxa de contagem líquida no fotopico de ^{214}Bi ao subtrair as contagens totais das contagens, dividiu-se pelo tempo de leitura e subtraiu-se da taxa da Radiação de Fundo e dividindo este resultado pelo tempo de leitura. Além disso, com o uso dessas informações, foram gerados também valores de intensidade efetiva (cps.g^{-1}) para cada um dos picos de interesse ao se dividir os valores de contagem por tempo pela massa de cada padrão, traçando, dessa forma, as curvas para os espectrômetros *Digidart* e Poço.

No caso do tório, os padrões são de areia monazítica e os códigos daqueles utilizados são NBL-106-A, NBL-107-A, NBL-108-A, NBL-109-A, NBL-110-A, para o Poço e NBL-107-A, NBL-109-A, NBL-110-A, para o *Digidart*. Já relativamente ao potássio, os padrões são o resultado de uma mistura de KCl puro, com concentração de 52% de K (código LII-KCl-1) e procedeu-se a mistura e homogeneização com sílica pura, adicionando-se 54,16g de sílica a 28,9g de KCl (código LII-KCl-2), 80,12g de sílica a 5,80g de KCl (código LII-KCl-3), 82,11g de sílica a 2,90g de KCl (código LII-KCl-4) e 84,72g de sílica a 0,5g de KCl

(código LII-KCl-5), usados em ambos os detectores, à exceção do LII-KCL-3, o qual foi utilizado apenas no espectrômetro poço. As tabelas 2 e 3 ilustram todos os resultados obtidos para as leituras dos padrões empregados na calibração dos detectores.

Tabela 2 - Parâmetros utilizados para o espectrômetro *Digidart*, visando à construção das curvas de calibração em concentração dos radioelementos de interesse.

Código do Padrão	Massa (g)	Concentração	Tempo de contagem (min)	Número de Contagens	Taxa de Contagem Líquida (cpm)	Intensidade Efetiva (cpm/g ⁻¹)	log (concentração)
eU=C_U (ppm)							
NBL-102-A	50,00	1000	15,94	1749	95,42	1,91	3
NBL-104-A	48,96	100	59,96	1123	4,4585	0,09	2
NBL-105-A	50,00	10	176,40	2698	1,024	0,02	1
RADIAÇÃO DE FUNDO					14,271		
eTh=C_{Th} (ppm)							
NBL-107-A	50,00	1000	18,53	661	27,69	0,55	3
NBL-109-A	48,96	100	41,37	524	4,68	0,10	2
NBL-110-A	50,00	10	110,97	1012	1,14	0,02	1
RADIAÇÃO DE FUNDO					7,98		
C_K (%)							
LII-KCl-1	61,50	52	33,36	5518	120,36	1,96	1,72
LII-KCl-2	83,06	25	65,40	5940	45,80	0,55	1,40
LII-KCl-4	85,01	2,5	172,27	10194	14,16	0,17	0,40
LII-KCl-5	85,22	0,5	333,07	18927	11,81	0,14	-0,30
RADIAÇÃO DE FUNDO					45,02		

Tabela 3- Parâmetros utilizados para o espectrômetro Poço visando à construção das curvas de calibração em função da concentração dos radioelementos de interesse.

Código do Padrão	Massa (g)	Concentração	Tempo de contagem (min)	Número de Contagens	Taxa de Contagem Líquida (cpm)	Intensidade Efetiva (cpm/g ⁻¹)	log (concentração)
eU=C_U (ppm)							
NBL-101-A	50,00	10000	463,92	496378	1064,74	21,29	4
NBL-102-A	50,00	1000	492,74	115996	230,19	4,60	3
NBL-103-A	50,00	500	493,32	55129	106,53	2,13	2,70
NBL-104-A	48,96	100	497,06	15702	26,37	0,54	2
RADIAÇÃO DE FUNDO					5,221		
eTh=C_{Th} (ppm)							
NBL-106-A	50,00	10000	486,06	202356	412,58	8,25	4
NBL-107-A	50,00	1000	495,69	25825	48,36	0,97	3
NBL-108-A	50,00	500	447,78	13142	25,61	0,51	2,70
NBL-109-A	48,96	100	494,93	4570	5,50	0,11	2
NBL-110-A	50,00	10	498,58	1940	0,15	0,003	1
RADIAÇÃO DE FUNDO					3,737		
C_K (%)							
LII-KCI-1	61,50	52	496,31	67168	127,33	2,08	1,72
LII-KCI-2	83,06	25	495,18	40195	73,67	0,89	1,40
LII-KCI-3	85,92	5	479,99	9877	13,07	0,15	0,70
LII-KCI-4	85,01	2,5	495,34	8363	9,38	0,11	0,40
LII-KCI-5	85,22	0,5	493,79	5927	4,50	0,05	-0,30
RADIAÇÃO DE FUNDO					7,50		

O processo de calibração consistiu na determinação da taxa de contagem líquida no fotopico de interesse, definindo-se a *intensidade efetiva* (I) como este valor dividido pela massa do padrão. Após esse processo, foi possível construir as curvas para os radioelementos

de interesse, expressas nas equações 21 a 29. Para a Torre, utilizaram-se as curvas de (DUARTE e BONOTTO, 2000) (Equações 21 a 23) sendo traçadas curvas apenas para os espectrômetros *Digidart* (Equações 24-26) e Poço (Equações 27-29).

Tais curvas expressam o equivalente urânio ($eU=C_U$, em ppm), equivalente tório ($eTh=C_{Th}$, em ppm) e concentração de potássio (C_K , em %) em função da intensidade efetiva (taxa de contagem por massa; I_U , I_{Th} e I_K), respectivamente, para urânio, tório e potássio (Tabelas 2 e 3). As figuras 29 e 30 ilustram as curvas traçadas para os espectrômetros *Digidart* e Poço. Todas as curvas se mostram lineares com significativos coeficientes de correlação de Pearson.

No caso do BGO, essa calibração já é fornecida pelo fabricante, não sendo necessária ou acessível para o usuário. O valor usado para o alinhamento eletrônico do detector é de 660 keV correspondente à energia gama do ^{137}Cs para a linearização e garantia de que todos os picos estão adequadamente posicionados no espectro. As contagens para este espectrômetro são fornecidas em cps, K (%), eU (ppm), eTh (ppm).

$$\log(C_U) = 1,057 * (\log I_U) + 2,578 \quad \text{Equação 21}$$

$$\log(C_{Th}) = 1,075 * (\log I_{Th}) + 3,273 \quad \text{Equação 22}$$

$$\log(C_K) = 0,953 * (\log I_K) + 1,459 \quad \text{Equação 23}$$

$$\log(C_U) = 0,9775 * (\log I_U) + 2,7978 \quad \text{Equação 24}$$

$$\log(C_{Th}) = 1,4385 * (\log I_{Th}) + 3,3992 \quad \text{Equação 25}$$

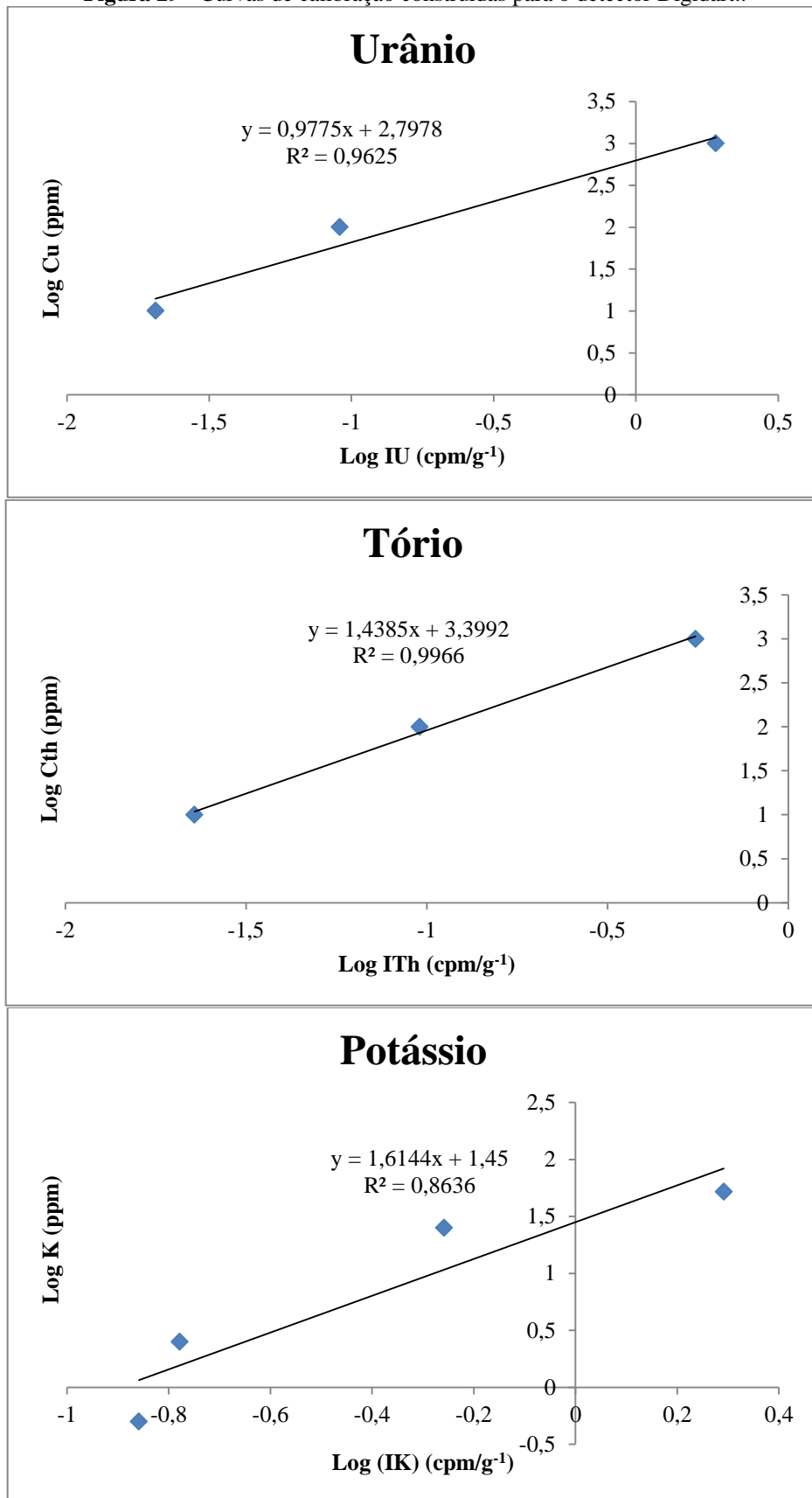
$$\log(C_K) = 1,6144 * (\log I_K) + 1,45 \quad \text{Equação 26}$$

$$\log(C_U) = 1,2403 * (\log I_U) + 2,2888 \quad \text{Equação 27}$$

$$\log(C_{Th}) = 0,8706 * (\log I_{Th}) + 3,0357 \quad \text{Equação 28}$$

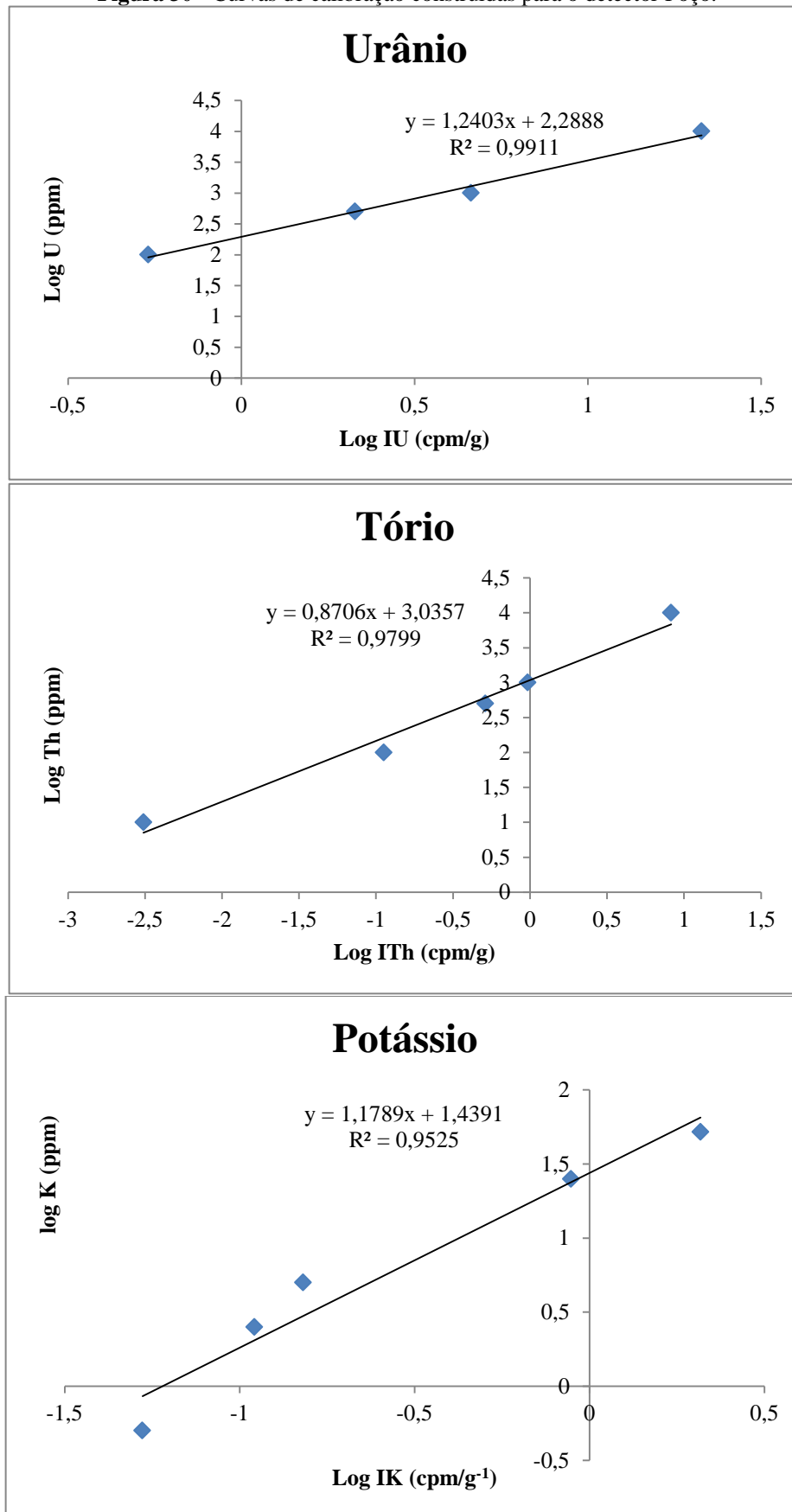
$$\log(C_K) = 1,1789 * (\log I_k) + 1,4391 \quad \text{Equação 29}$$

Figura 29 - Curvas de calibração construídas para o detector Digidart..



Fonte: Autoria própria.

Figura 30 - Curvas de calibração construídas para o detector Poço.



Fonte: Autoria própria.

5. ÁREA DE ESTUDO PARA APLICAÇÃO DOS MÉTODOS GAMAESPECTROMÉTRICOS

A área de estudo para aplicação dos métodos gamaespectrométricos está localizada na Bacia do Paraná, a qual apresenta uma área de 1,5 milhão de km², divididos entre os países Brasil, Argentina, Uruguai e Paraguai, e que possui o preenchimento sedimentar-magmático incluindo seis unidades estratigráficas, depositadas a partir do Neo-Ordoviciano (458 milhões de anos) e finalizando no Neocretáceo (cerca de 90 milhões de anos), chegando a possuir espessuras com até 7 km em seu depocentro (MILANI *et al.*, 2006).

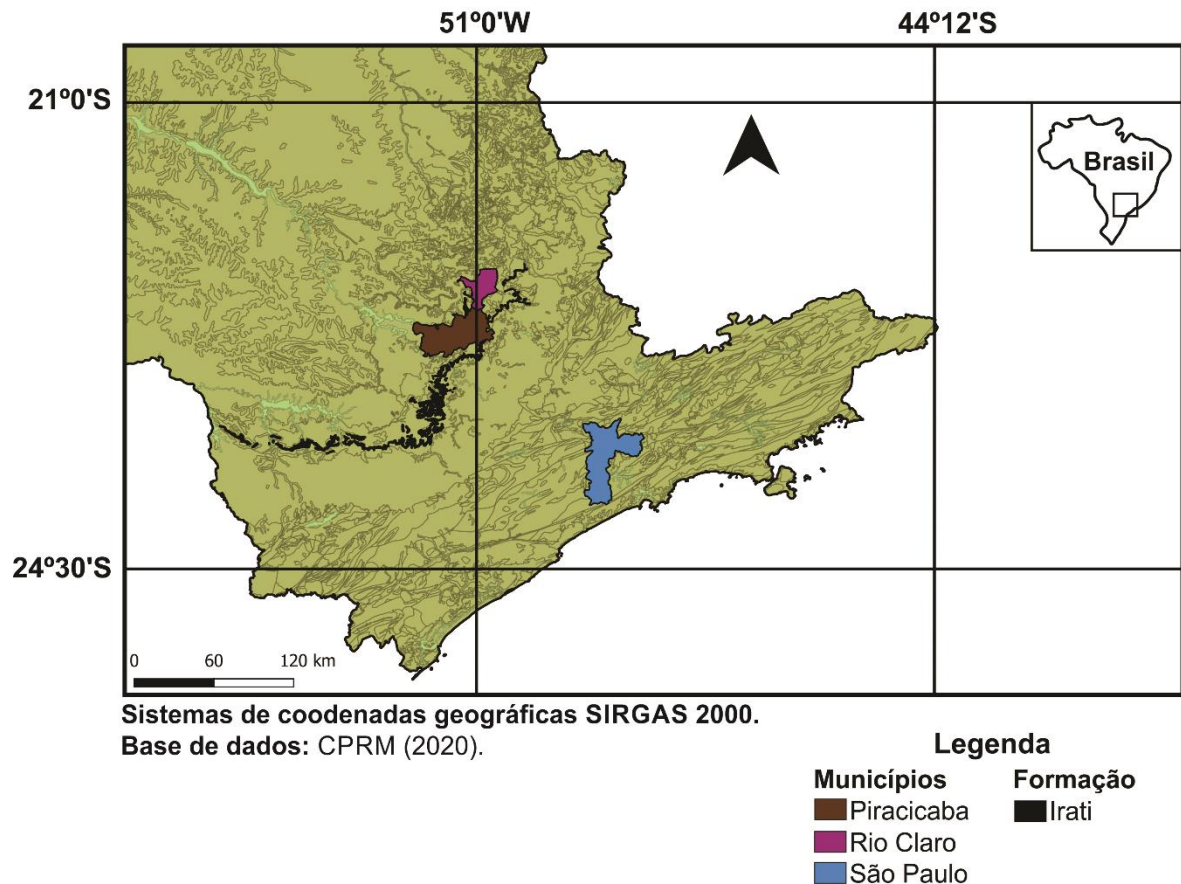
A amostragem foi realizada na Formação Irati, no Estado de São Paulo, o qual expõe toda a seção permiana da Bacia do Paraná, isto é, Grupo Itararé, de idade permo-carbonífera, Formação Tatuí (Grupo Guatá) e o Grupo Passa Dois (formações Irati e Corumbataí). A Formação Irati é dividida em dois membros, Taquaral e Assistência (BARBOSA & GOMES, 1958; MILANI *et al.*, 2007; HOLZ *et al.*, 2010).

A Formação Irati (Figura 31) equivale à unidade basal do Grupo Passa Dois da Bacia do Paraná e é subdividida nos membros Taquaral e Assistência. Há muito tempo, a Formação Irati vem despertando certo interesse econômico e científico. Refere-se a unidade permiana com extensão geográfica de maior área contínua lateral da Bacia do Paraná, mesmo com sua pequena espessura. A formação exhibe litofácies bem singulares como evaporitos e a oscilação de calcários dolomíticos e folhelhos betuminosos. Outro ponto de destaque é a existência de mesossaurídeos (répteis aquáticos primitivos), que possibilitam a realização de excelentes correlações estratigráficas com unidades eopermianas do sul da África (LAGES, 2004).

Irati, ou rio do mel na língua tupi (AMARAL, 1967), foi o termo utilizado por WHITE (1908 apud SANTOS NETO, 1993) ao sugerir a primeira coluna estratigráfica da Bacia do Paraná, designando uma espessa sucessão de folhelhos pretos pirobetuminosos, a qual portava o réptil *Mesosaurus brasiliensis*, identificada na seção-tipo, aproximadamente, 3 km ao sul da estação ferroviária da cidade de Irati, no Estado do Paraná

Há consonância em relação à vasta extensão e, bem como sua homogeneidade, dos sítios deposicionais os quais deram origem para a Formação Irati, abrangendo as conjunturas de fundo periodicamente anóxico que originaram os folhelhos betuminosos. É possível verificar, inclusive, sua unanimidade em relação à interpretação de extrema calma tectônica ao longo da acumulação da Formação Irati. (LAGES, 2004).

Figura 31 - Localização da área de amostragem.



Fonte: Autoria própria.

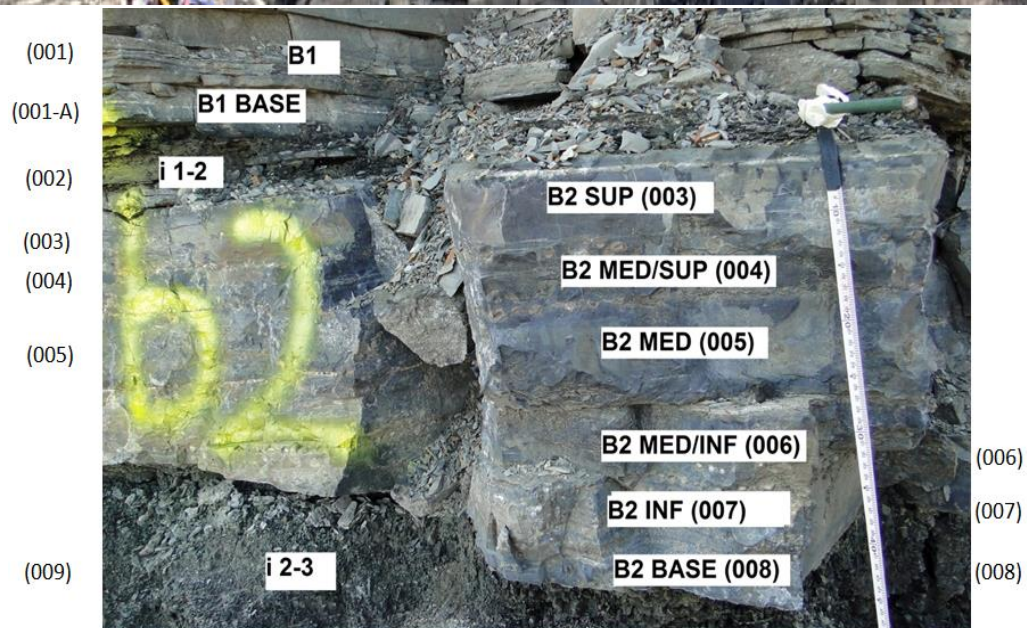
O Irati é formado, principalmente, por estruturas tectônicas que consistem em falhamento e, por outro lado, possui áreas atectônicas, que são pequenas e localizadas, produzindo dobras por escorregamentos subaquáticos, os quais foram também responsáveis pela formação de brechas calcárias, de um ou em três a quatro níveis pouco espessos de brecha calcária intraformacional, existente no banco da base da formação em estudo.

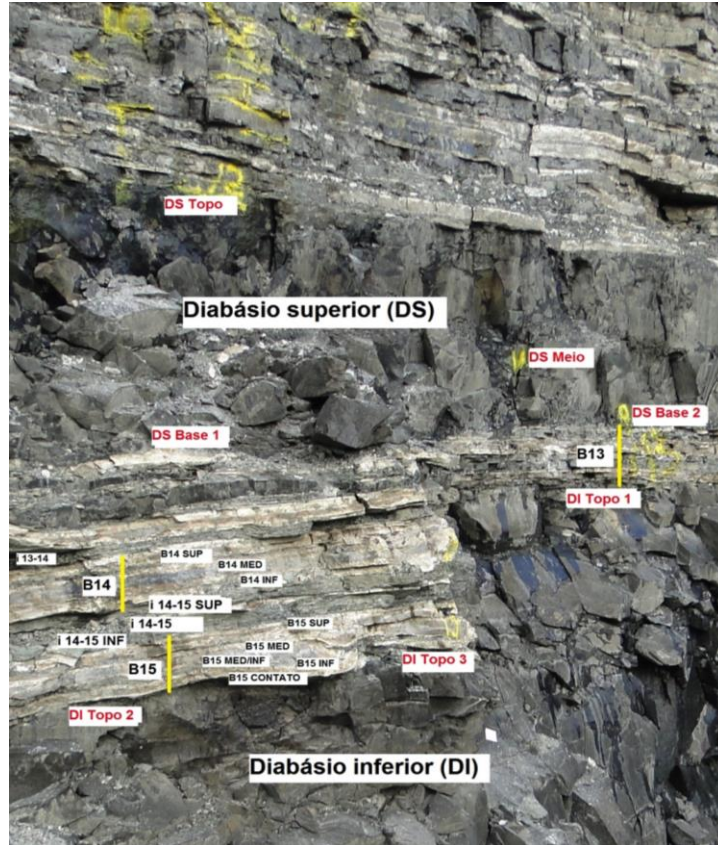
A grande variação observada, referente à litologia do Irati consiste nas proporções entre calcário e folhelho, porém suas características são semelhantes e inconfundíveis, sendo essa a razão pela qual é considerada excelente formação e chave para o estudo estratigráfico do Gondwana.

Nas ocorrências da formação localizadas mais ao norte, ou seja, no entorno da cidade de Limeira e Distrito de Assistência (Município de Rio Claro) (Figuras 32 a 34), é bastante comum observar a alternância de dois conjuntos de camadas, os quais diferem por suas espessuras, sendo um deles centimétrico (de 0,5 a 2 cm de espessura), por vezes, separados por lâminas delgadas milimétricas de folhelho, o que proporciona o aspecto de um sedimento rítmico. Já o segundo conjunto é decimétrico, indicando a alternância de fases de

sedimentação homogênea por longos períodos, sendo sucedida, posteriormente, para as fases de sedimentação intermitente, o que de forma muito provável, reflete as variações climáticas (AMARAL, 1967).

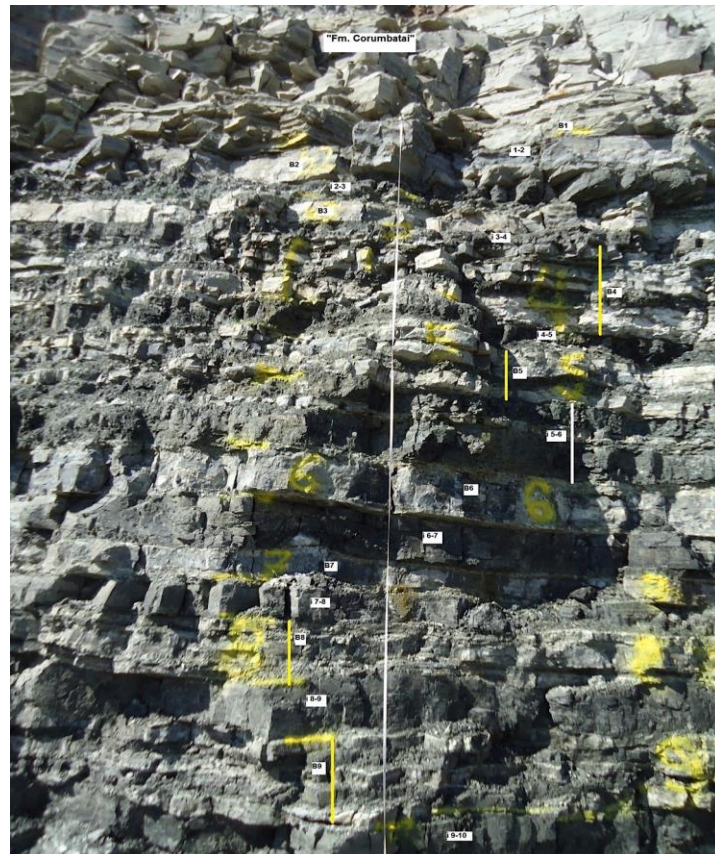
Figura 32 - Parte superior do paredão de amostragem. Formação Irati, Pedreira Partecal, Distrito de Assistência.

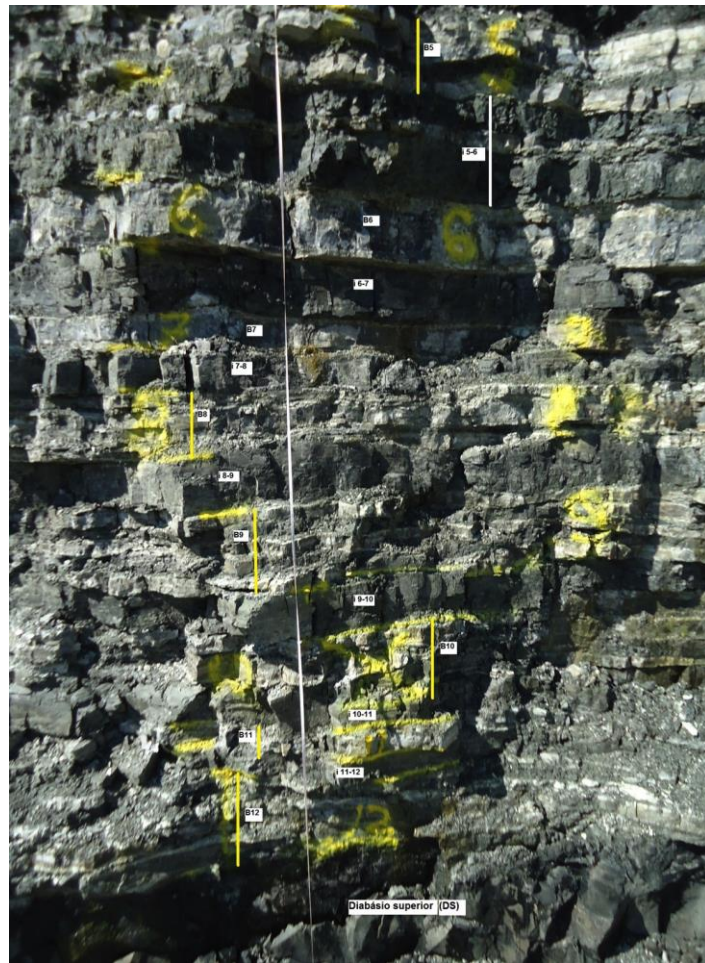




Fonte: Descrição realizada pelo geólogo Mitsui Arai, UNESPetro-Centro de Geociências Aplicadas ao Petróleo).

Figura 33 - Esquema de amostragem da Formação Irati, do meio do paredão da Pedreira Partecal, Distrito de Assistência.





Fonte: Descrição realizada pelo geólogo Mitsui Arai, UNESPetro-Centro de Geociências Aplicadas ao Petróleo).

Figura 34 - Amostragem da parte inferior do paredão de amostragem. Formação Irati, Pedreira Partecal, Distrito de Assistência.



Fonte: Descrição realizada pelo geólogo Mitsui Arai, UNESPetro-Centro de Geociências Aplicadas ao Petróleo).

O atual interesse nessa formação vem se intensificando por conta da crescente busca da compreensão de ocorrências de óleo em fraturas de calcário. A Formação Irati possui folhelhos betuminosos permianos, os quais apresentam potencial para geração de hidrocarbonetos líquidos.

O mercado energético, no final da década passada, passou por uma grande revolução no setor energético mundial por conta da exploração dos *oil shales* (folhelhos oleígenos, Figura 35), além da crescente produção de petróleo e gás natural advindos dessas rochas, que são consideradas como reservatórios não-convencionais de hidrocarbonetos (SLATT, 2011), fato que levou vários países a reverterem suas economias enfraquecidas, tornando-se, mesmo que por um curto período de tempo, autossuficientes na produção de gás natural e petróleo. Simultaneamente, outros países resistiam em adotar a exploração, por conta, especialmente, das questões ambientais, mesmo com vastas ocorrências dessas rochas em seus territórios (KPMG, 2014).

Figura 35 - Amostra de *Oil Shale*.



Fonte: Geólogo Dr. Iata Anderson de Souza e colaboradores.

No âmbito mundial, o entusiasmo pelo óleo extraído dessas rochas (“óleo de xisto”) não configura nenhuma novidade, visto que, já no início do século XX, os Estados Unidos, a França, a Itália, a Alemanha e a Escócia já anteviam o potencial econômico dessas rochas,

além de acreditarem na capacidade de suprir a escassez interna desses países, substituindo o carvão (McKEE, 1925; LEITH, 1931).

Relativamente ao Brasil, os estudos geoquímicos e geológicos dos folhelhos orgânicos na forma de potenciais geradores de hidrocarbonetos advêm de um período que antecede a exploração e produção de petróleo e gás natural a partir de reservatórios convencionais. Isto porque a demanda por combustíveis e derivados de petróleo em nosso país conseguia ser suprida por companhias estrangeiras, além da ausência de perspectiva de ocorrência de grandes reservatórios de hidrocarbonetos em território nacional, tornando o Brasil, que estava em plena expansão econômica, dependente do fornecimento dessas companhias, muitas vezes na iminência de cessação ou limitação do fornecimento (MARASCHIN; RAMOS, 2015).

6. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste trabalho foram lidas 111 amostras de rocha que foram coletadas da pedreira localizada na região do Distrito de Assistência, Rio Claro, Estado de São Paulo, as quais foram moídas até 45 μm para a realização das leituras. Destas, 20 amostras foram lidas nos 4 espectrômetros, a fim de realizar a análise comparativa da performance deles.

6.1 BGO

Relativamente ao BGO, este deve ser analisado separadamente dos outros, em virtude de já ter sido fornecido com a calibração realizada pelo fabricante. Os dados estatísticos principais para as leituras realizadas (arranjo experimental na Figura 36) estão ilustrados na Tabela 4. Segundo se observa, não ocorreu variabilidade significativa entre os valores obtidos para eU, eTh e K nas 111 amostras de rocha bruta analisadas por este detector, as quais possuem massas aproximadas de 1kg a 6 kg e densidade estimada de 2 a 3 g/cm^3 (Figura 37). Isto pode ser devido à geometria amostra/detector empregada durante as análises (Figura 38). Além disso, como as amostras não estavam pulverizadas, a absorção de raios gama pelos blocos de rocha pode ter afetado as leituras, conduzidas em tempos de 15 minutos. Embora o procedimento experimental adotado possa não ter sido o mais indicado, este equipamento tem sido bastante utilizado em monitoramentos radiométricos conduzidos em trabalhos de campo.

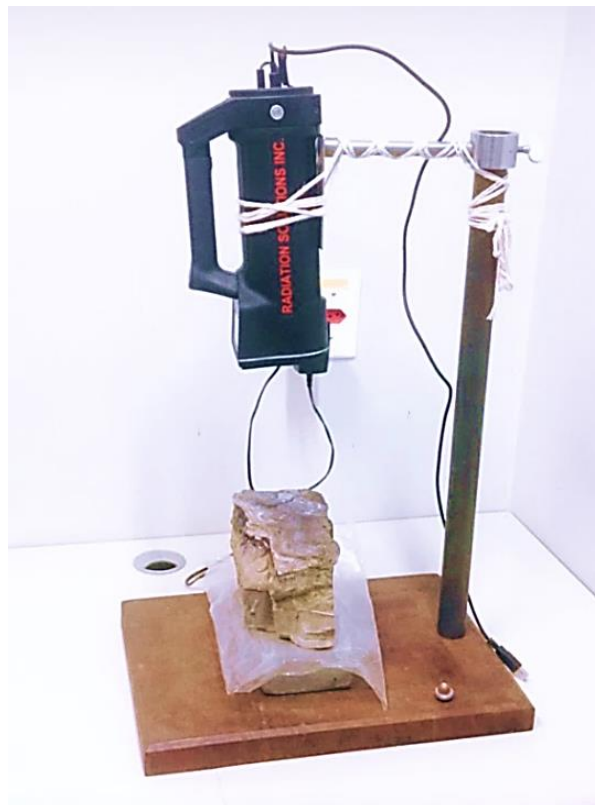
Tabela 4 - Tabela síntese dos parâmetros estatísticos relacionados com as amostras analisadas pelo detector BGO.

eU (ppm)				
Valor Mínimo	Valor Máximo	Média	Mediana	Moda
2,8	6,4	3	3,3	3,3

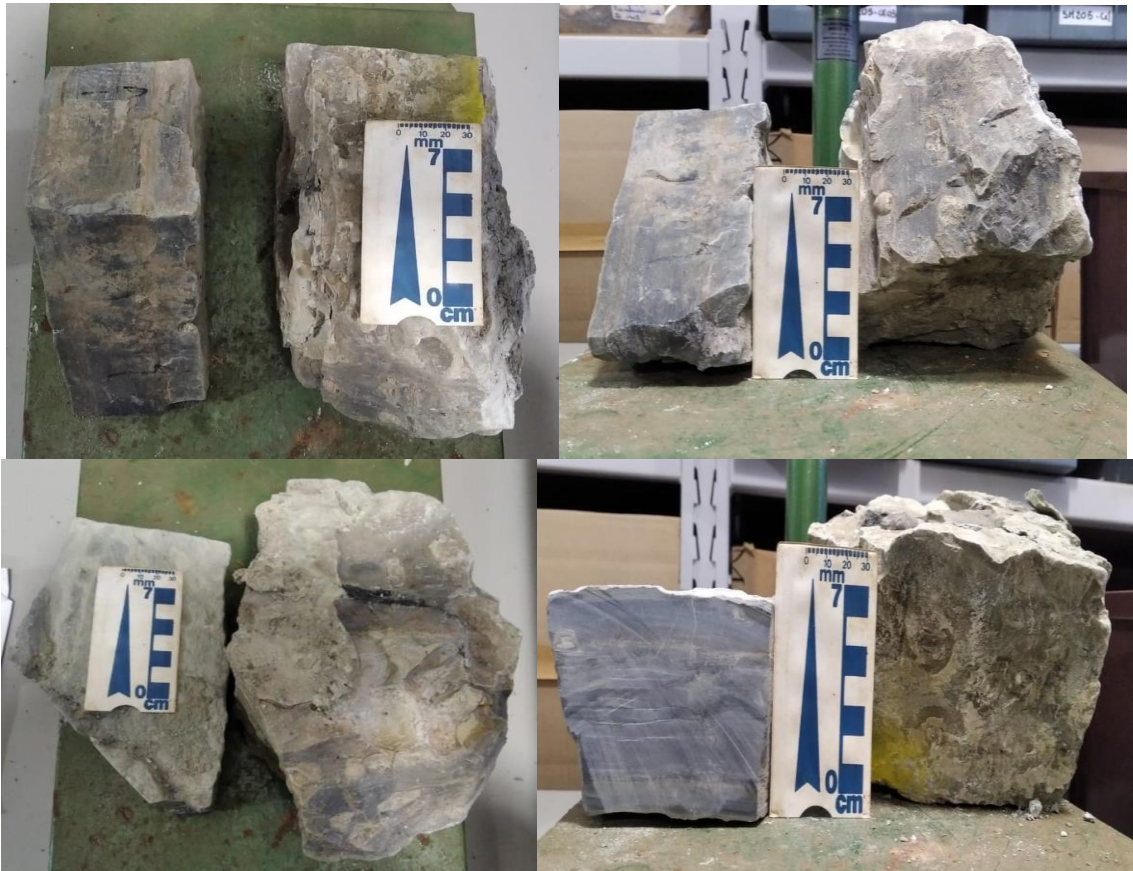
eTh (ppm)				
Valor Mínimo	Valor Máximo	Média	Mediana	Moda
9,6	11,6	10	10,6	10,6

K (%)				
Valor Mínimo	Valor Máximo	Média	Mediana	Moda
0,9	1,2	0,98	1,0	1,0

Figura 36 - Foto da rocha analisada e detector BGO.



Fonte: Autoria própria.

Figura 37 - Blocos de amostras usados para cálculo da densidade.

Fonte: Autoria própria.

O detector BGO apresentou resultados que correspondem à Distribuição Normal segundo ilustrado no gráfico “valor médio da classe vs. frequência acumulada” (Figura 38), construído a partir dos dados na Tabela 5, que tende a ser linear na região central de distribuição (50%) (ROVERATTI *et al.*, 2020). Outra observação importante é que o valor médio para as leituras de urânio encontradas na amostra mostra similaridade ao comumente registrado na literatura especializada (ADAMS e GASPARINI, 1970). O apêndice A contém a tabela síntese de todas as leituras das amostras realizadas no BGO.

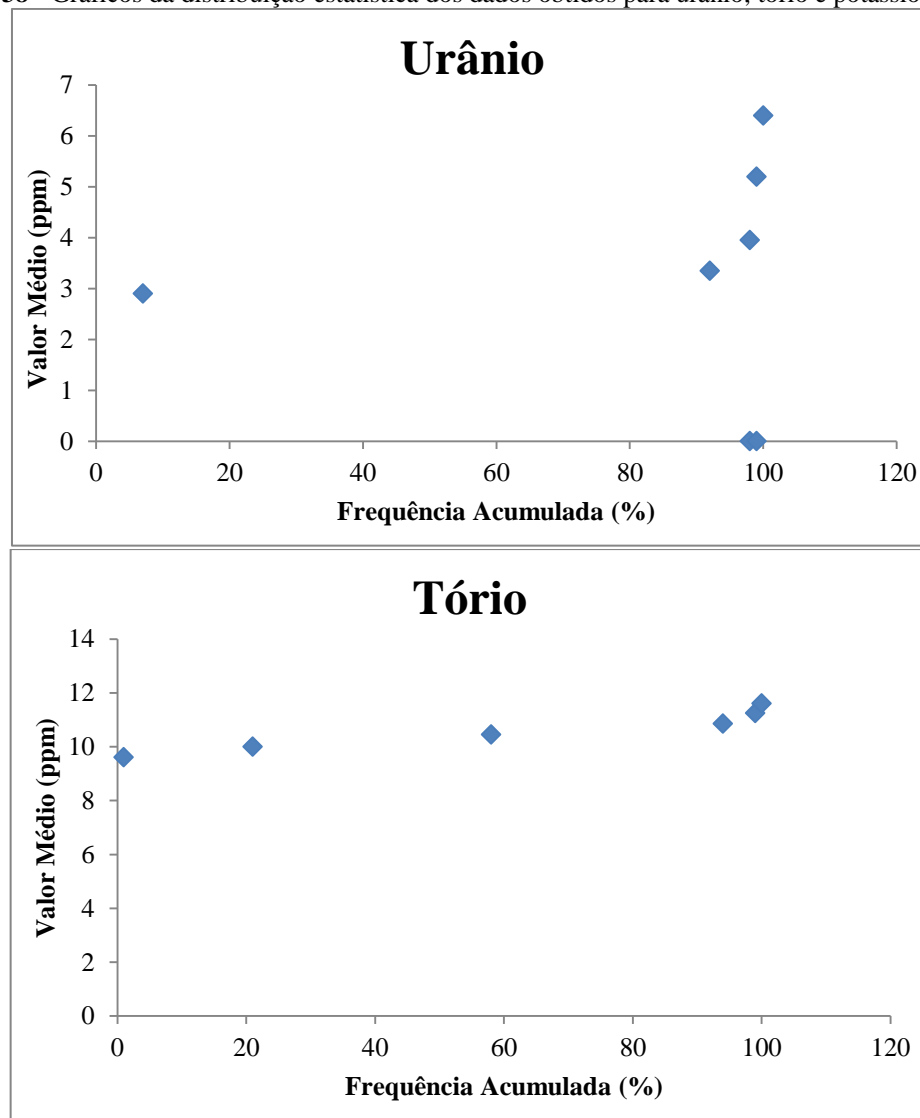
Tabela 5 - Valores de classes utilizados para a análise estatística dos dados.

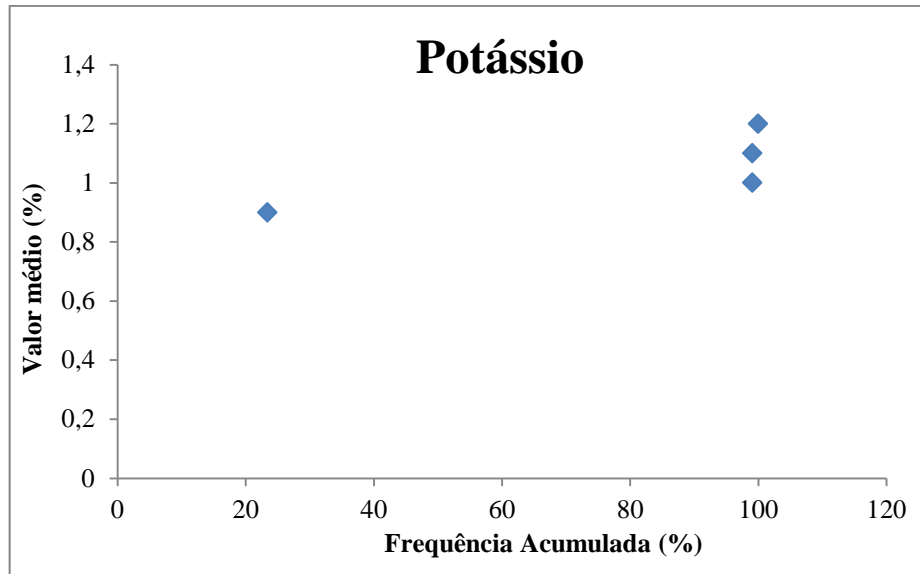
eU (ppm)				
Classe	Valor Médio	Frequência	Frequência Acumulada	Frequência Acumulada (%)
2,5 F 3,1	2,9	8	8	7
3,1 F 3,7	3,35	94	102	92
3,7 F 4,3	3,95	7	109	98
4,3 F 4,9	0	0	109	98
4,9 F 5,5	5,2	1	110	99
5,5 F 6,1	0	0	110	99
6,1 F 6,7	6,4	1	111	100

eTh (ppm)				
Classe	Valor Médio	Frequência	Frequência Acumulada	Frequência Acumulada (%)
9,3 F 9,7	9,6	1	1	1
9,7 F 10,3	10	22	23	21
10,3 F 10,7	10,45	42	65	58
10,7 F 11,1	10,85	40	105	94
11,1 F 11,5	11,25	5	110	99
11,5 F 11,9	11,6	1	111	100

Potássio (%)				
Classe	Valor Médio	Frequência	Frequência Acumulada	Frequência Acumulada (%)
0,8 F 1,2	0,9	26	26	23,42
0,8 F 1,2	1	84	110	99,09
0,8 F 1,2	1,1	0	110	99,09
0,8 F 1,2	1,2	1	111	100

Figura 38 - Gráficos da distribuição estatística dos dados obtidos para urânio, tório e potássio no BGO.





Fonte: Autoria própria.

6.2 Uso de blindagem de Pb para o detector BGO

A fim de obter leituras com maior compatibilidade com os outros detectores, foram selecionadas de 20 amostras já pulverizadas dos blocos de amostra de rocha advindas do paredão de amostragem (cada um com massa superior a 1 kg, não ultrapassando 6kg) cujas leituras haviam sido feitas no arranjo experimental do BGO ilustrado na Figura 36. Tais amostras foram selecionadas de acordo a sua disponibilidade e litologia, dessa forma, tem-se 10 amostras de diabásio (DI topo 2, H3 até H8 e H10 até H12), 9 de calcário (006, 012 top, 012 bottom, 016A, 017, 019, 052, 055, 070) e 1 de folhelho (016). O material pulverizado, entre 4,7g e 40,8g, foi inserido nas mesmas caixas cilíndricas de alumínio utilizadas nos ensaios conduzidos com os detectores de NaI(Tl), as quais foram introduzidas na blindagem ilustrada na Figura 39, consistindo de um anel de chumbo de 6,7cm de espessura, 26,9cm de diâmetro total, 13,4cm de diâmetro interno e 14,5cm de altura; esse anel estava apoiado sobre outro de madeira, com as mesmas dimensões, exceto altura correspondente a 9,8cm. O detector de BGO foi inserido na blindagem de chumbo, permanecendo a uma distância de 6 mm da amostra, cuja geometria foi a mesma adotada nos experimentos realizados com os detectores de NaI(Tl). O tempo de leitura para cada amostra consistiu em 30 minutos (1800 segundos), o maior tempo permitido pelo equipamento.

Os resultados do experimento estão ilustrados na Tabela 6. Assim como apresentado na Tabela 5, os dados obtidos nas leituras radiométricas com o BGO indicaram pouca variabilidade dos valores, isto é, 0,7 - 1,0 ppm para urânio, 4,8 - 5,6 ppm para tório e 0,5 - 0,6 % para potássio.

Figura 39 - Arranjo experimental para as leituras das amostras pulverizadas com o BGO inserido em blindagem de Pb.



Fonte: Autoria própria.

Tabela 6 - Resultados obtidos para as leituras das amostras pulverizadas com o BGO inserido em blindagem de Pb.

Amostra	Massa (g)	Tempo (s)	eU (ppm)	eTh (ppm)	K (%)
DI Topo 2	40,83	1800	0,9	5,4	0,6
006	20,71	1800	0,8	5,0	0,6
017	9,52	1800	0,8	4,8	0,6
052	28,28	1800	0,8	5,1	0,6
055	43,77	1800	0,7	5,2	0,6
070	35,69	1800	0,7	5,1	0,6
H3	27,06	1800	0,9	5,2	0,6
012 (top)	6,63	1800	0,9	4,9	0,6
012 (bottom)	23,20	1800	0,8	4,9	0,6
H8	7,12	1800	0,8	5,2	0,6
H7	14,25	1800	0,9	4,9	0,6
H6	4,57	1800	0,7	5,2	0,6
H4	15,15	1800	0,8	5,2	0,6
H5	10,39	1800	0,9	5,0	0,6
H10	31,85	1800	0,8	5,1	0,6
H12	10,53	1800	0,7	4,9	0,6
H13	4,71	1800	0,7	5,1	0,6
016	34,89	1800	1,0	5,6	0,6
019	34,79	1800	0,8	4,8	0,6
016A	25,48	1800	0,8	5,1	0,5

Observa-se redução nos valores obtidos para o BGO ao se comparar as leituras dos blocos de rocha com as amostras pulverizadas. Tais diferenças devem-se, provavelmente, ao uso das cápsulas para a leitura pulverizada, as quais reduzem a área de emissão dos raios gama e também a sua incidência no detector. Além disso, o uso da blindagem exclui interferências externa (exemplos: luz, ar atmosférico), o que justificaria as leituras mais baixas com o uso da blindagem. Por não apresentar variação dos valores das leituras e estas serem muito abaixo das leituras dos demais detectores, o BGO não é indicado para estes litotipos.

6.3 Detectores de NaI(Tl) de bancada e portátil

Os detectores de NaI(Tl) usados neste trabalho foram os que apresentaram resultados com maior variabilidade. Os dados para as 20 amostras analisadas estão representados na Tabela 7.

Os dados em vermelho não foram obtidos nas leituras, sendo calculados a partir da fórmula do limite crítico (L_c), ilustrada na Equação 30, a qual foi descrita por Currie (1968) e tem a função de determinar estatisticamente se um pico é ou não verdadeiro. Quando as contagens líquidas no pico de interesse excedem o valor calculado de L_c , significa que o radionuclídeo de interesse foi detectado na amostra.

$$L_c = 2,33 \cdot \sqrt{N_b} \quad \text{Equação 30}$$

Onde: N_b é o número de contagens devido à radiação de fundo.

No caso dessas contagens resultarem em menor valor, é necessário o cálculo do limite de detecção L_D (CURRIE, 1968), em número de contagens e, para a sua determinação, é assume-se que a radiação de fundo se distribui normalmente. O L_D é expresso pela Equação 31:

$$L_D = 2,71 + 4,61 \cdot \sqrt{N_B} \quad \text{Equação 31}$$

Sendo: L_D o limite de detecção, N_B o número de contagens da radiação de fundo para cada janela de interesse (DUARTE e BONOTTO, 2002).

Após efetuar o cálculo do limite de detecção L_D para as amostras realizou-se a divisão pelo tempo de leitura da amostra e massa da amostra e substituiu-se nas Equações 21 e 22

Tabela 7 - Resultados da análise de amostras selecionadas de rochas da Formação Irati pelos três detectores de NaI(Tl). Em vermelho, as amostras abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.

Sigla	Portátil	Torre	Poço	Portátil	Torre	Poço	Portátil	Torre	Poço
	eU (ppm)			eTh (ppm)			K (%)		
006	9,65	11,21	4,88	55,67	14,26	17,19	0,83	0,85	0,14
012 (top)	10,30	67,63	7,16	54,25	29,86	39,82	0,06	0,69	0,12
012 (bottom)	8,48	53,19	6,76	46,35	4,17	29,17	0,05	0,85	0,16
016	48,45	75,25	63,71	116,08	94,10	104,12	0,68	0,72	0,02
017	30,97	47,28	11,53	79,58	65,86	69,55	0,86	0,92	0,22
019	8,04	47,67	9,94	45,77	42,31	48,84	0,03	0,46	0,04
052	15,75	41,80	39,73	35,36	33,04	91,22	0,24	0,46	0,04
055	7,40	38,37	10,86	75,53	32,61	35,53	0,14	0,53	0,12
DS-Base 2	7,58	27,60	9,89	36,12	19,10	43,36	0,33	0,47	0,14
070	36,19	38,73	6,84	99,10	73,24	54,73	0,25	0,30	0,01
DI - Topo 2	11,37	32,50	14,21	1,18	31,53	32,24	0,01	0,55	0,02
H3	78,58	79,58	7,37	97,12	35,85	36,67	0,54	0,86	0,16
H4	38,30	44,61	22,68	96,00	26,01	52,12	0,58	0,73	0,08
H5	11,95	79,51	8,65	91,70	29,67	44,39	0,08	0,34	0,01
H6	45,56	72,34	11,52	99,64	60,39	61,70	0,59	0,64	0,18
H7	41,97	50,60	8,82	95,76	63,34	63,75	0,34	0,73	0,06
H8	38,35	55,36	18,21	69,98	68,96	70,45	0,45	0,60	0,18
H10	59,03	63,29	16,41	108,52	53,70	55,61	0,35	0,40	0,01
H12	46,24	46,97	23,87	121,80	61,79	64,67	0,44	0,54	0,03
H13	55,18	59,52	28,64	105,56	41,18	45,27	0,03	0,33	0,01
Máximo	78,58	79,58	63,71	121,80	94,10	104,12	0,86	0,92	0,22
Mínimo	7,40	11,21	4,88	1,18	4,17	17,19	0,011	0,30	0,01
Média	30,47	51,65	16,58	76,55	44,05	53,02	0,34	0,60	0,09

Dessa forma, ao se utilizar os valores P bicaudais estimados pelo software GraphPad advindos do coeficiente de correlação de Pearson para esses detectores, tem-se:

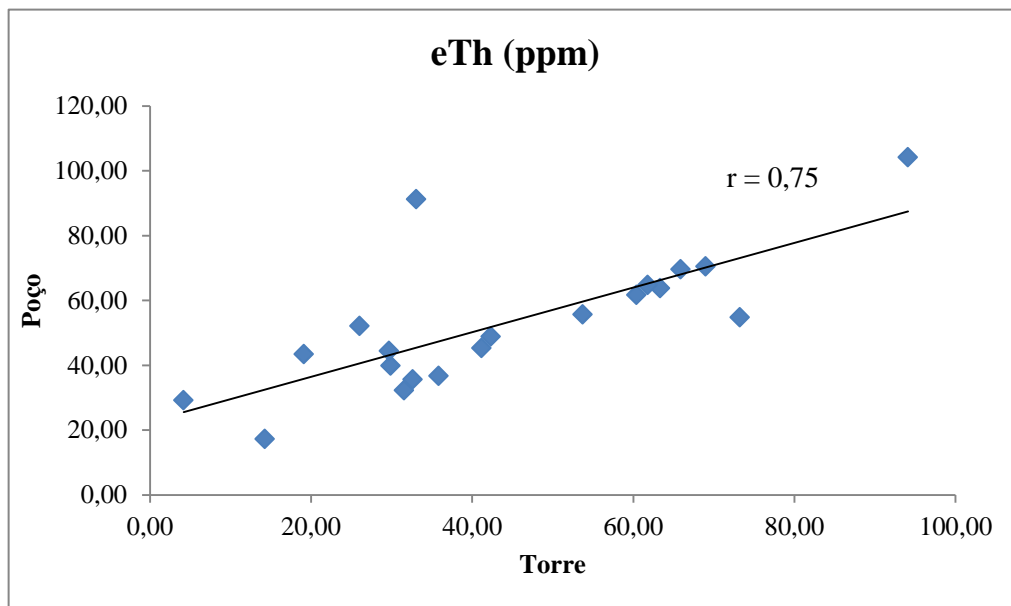
- entre Torre-Poço, para tório ($r = 0,75$ e $n = 20$; $P = 0,0001$) e potássio ($r = 0,71$ e $n = 20$; $P = 0,0005$), são considerados como estatisticamente extremamente significantes (Figura 40);

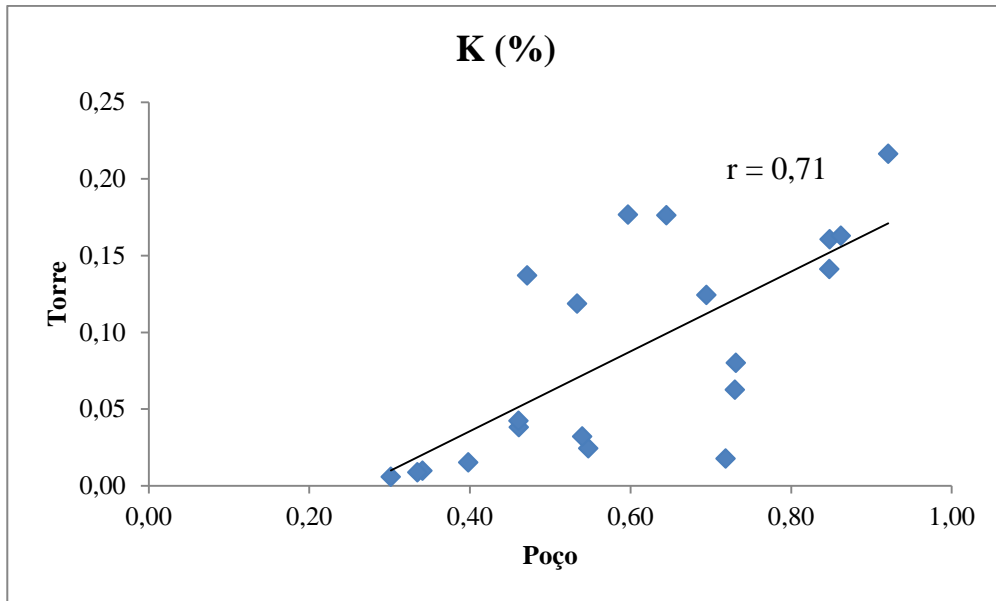
- entre Portátil-Torre, para urânio ($r = 0,53$ e $n = 20$; $P = 0,0162$) é considerado estatisticamente significativo; para tório e potássio (ambos $r = 0,59$ e $n = 20$; $P = 0,0062$), são considerados estatisticamente muito significantes (Figura 41);
- entre Portátil-Poço para potássio ($r = 0,46$ e $n = 20$; $P = 0,0413$), é considerado estatisticamente significativo (Figura 41).

As demais correlações encontradas, para urânio, entre Portátil-Poço ($r = 0,28$) e Torre-Poço ($r = 0,23$) e, para tório, entre os detectores Portátil-Poço ($r = 0,36$) não apresentaram valores P de significância estatística (Figura 42).

As melhores correlações encontradas são esperadas, pois, os detectores Torre e Poço possuem configurações (diâmetro do detector, material do qual é produzido, tipo de blindagem e dimensões) mais parecidas. No caso do urânio, como o pico analisado nos espectros obtidos com esses detectores situa-se próximo ao do potássio, ele pode ter sido afetado pelo efeito Compton, ocasionando interferência nos resultados obtidos e, conseqüentemente, nas correlações e valores P encontrados.

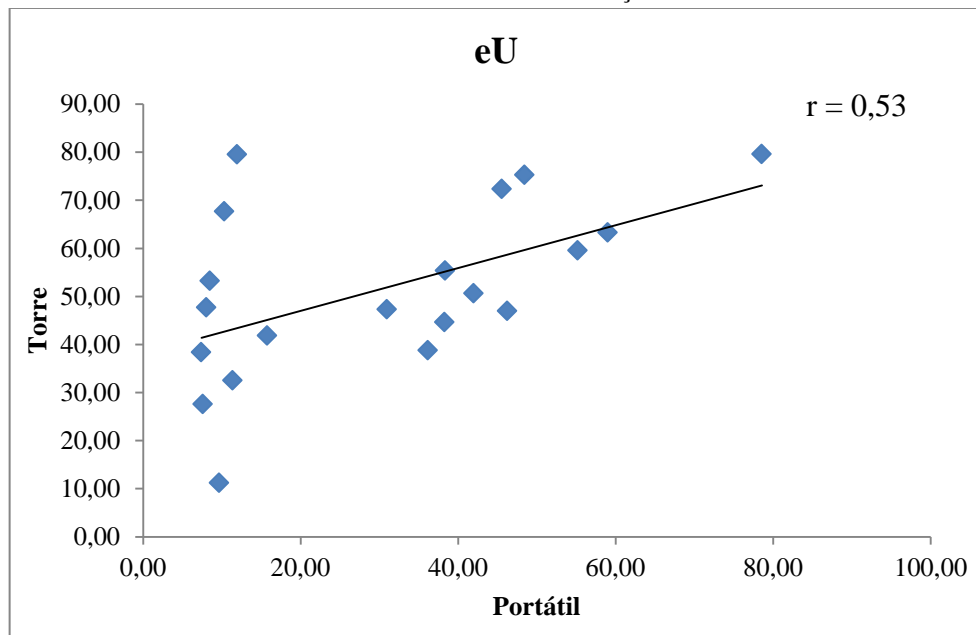
Figura 40 - Gráficos das correlações eTh e K para as leituras dos detectores Torre e Poço.

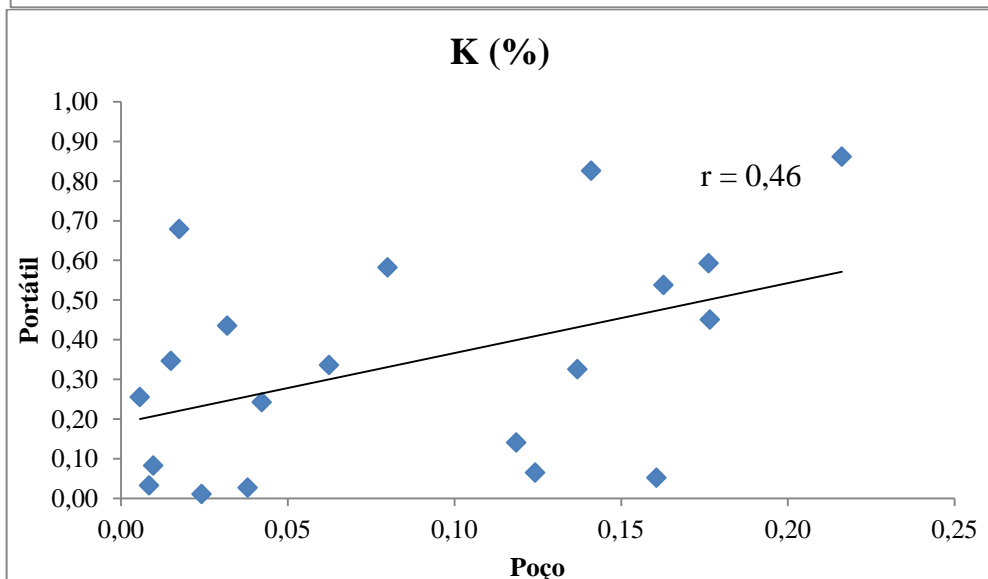
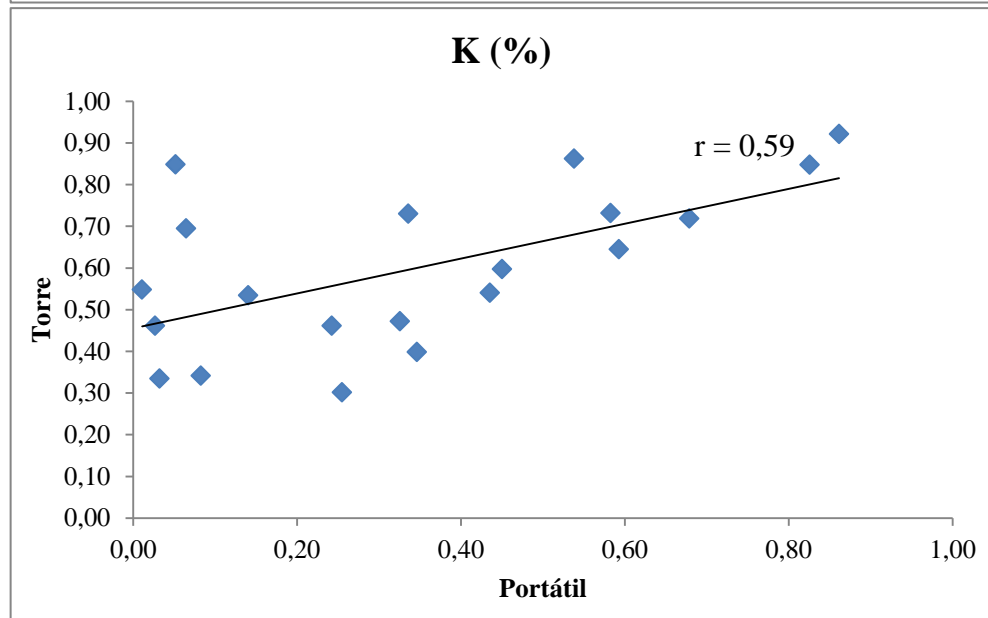
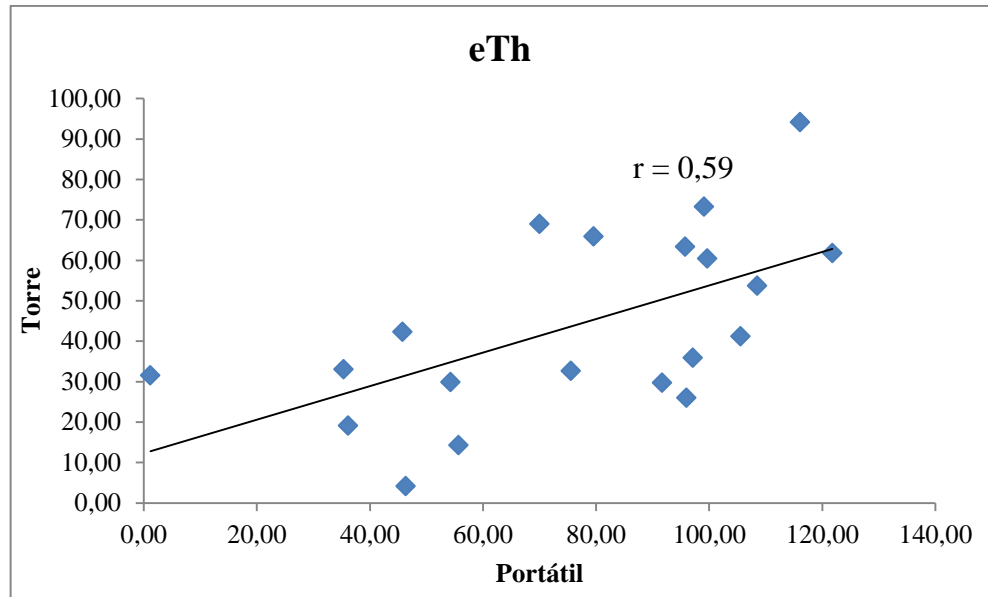




Fonte: Autoria própria.

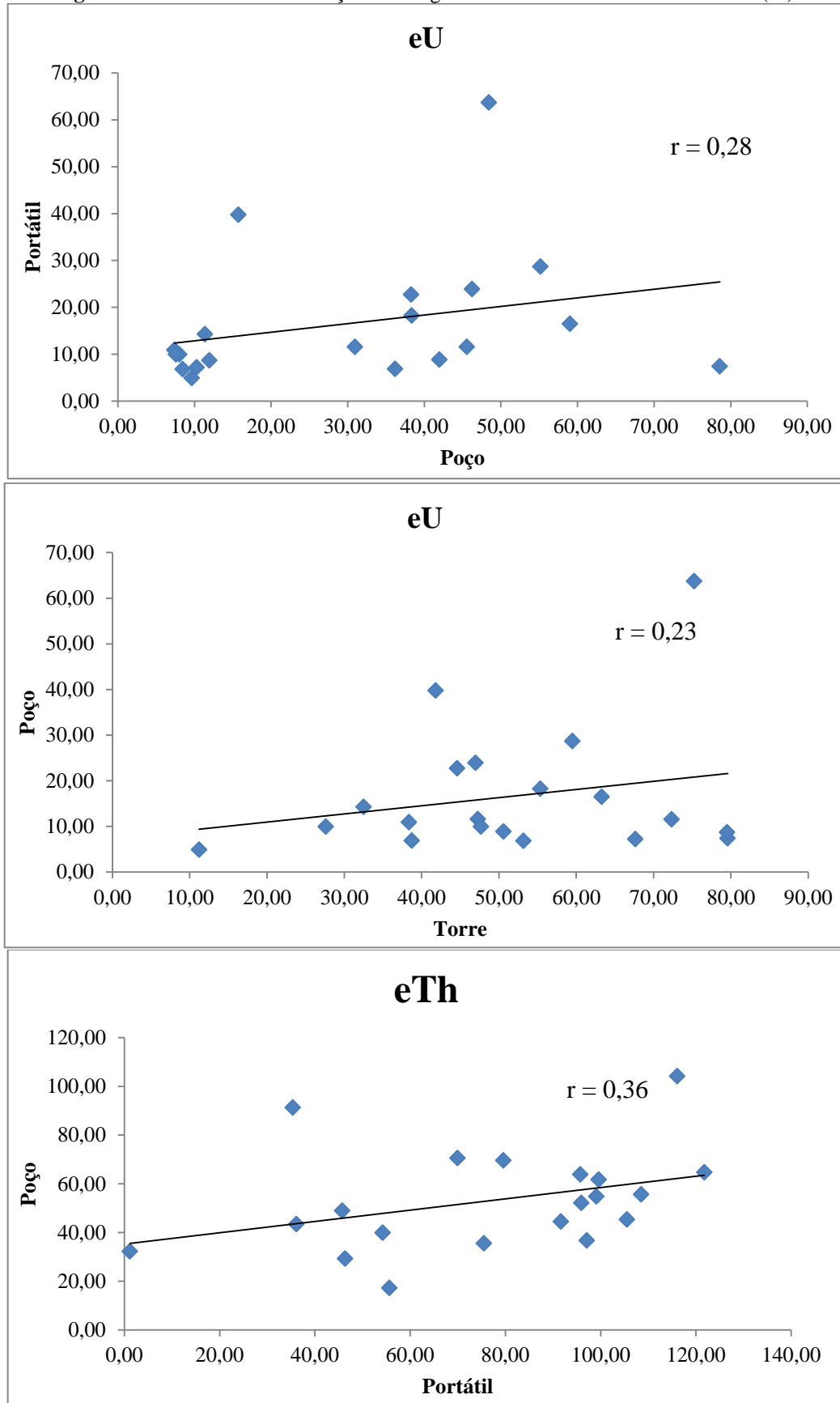
Figura 41 - Gráficos das correlações eU, eTh e K para as leituras dos detectores Portátil e Torre e para K entre os detectores Portátil e Poço.





Fonte: Autoria própria.

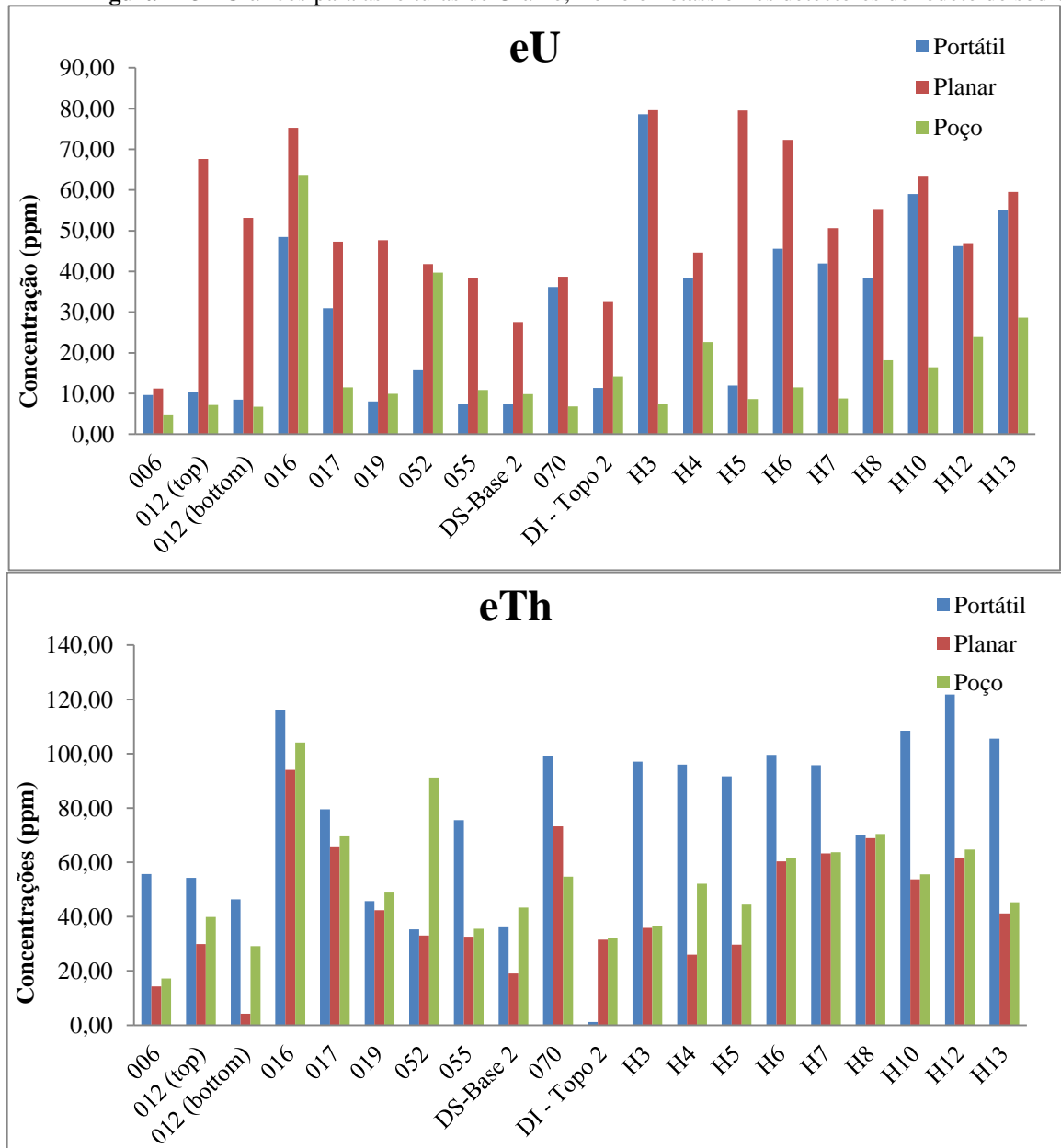
Figura 42 - Gráficos das correlações não significativas entre os detectores de NaI(Tl).

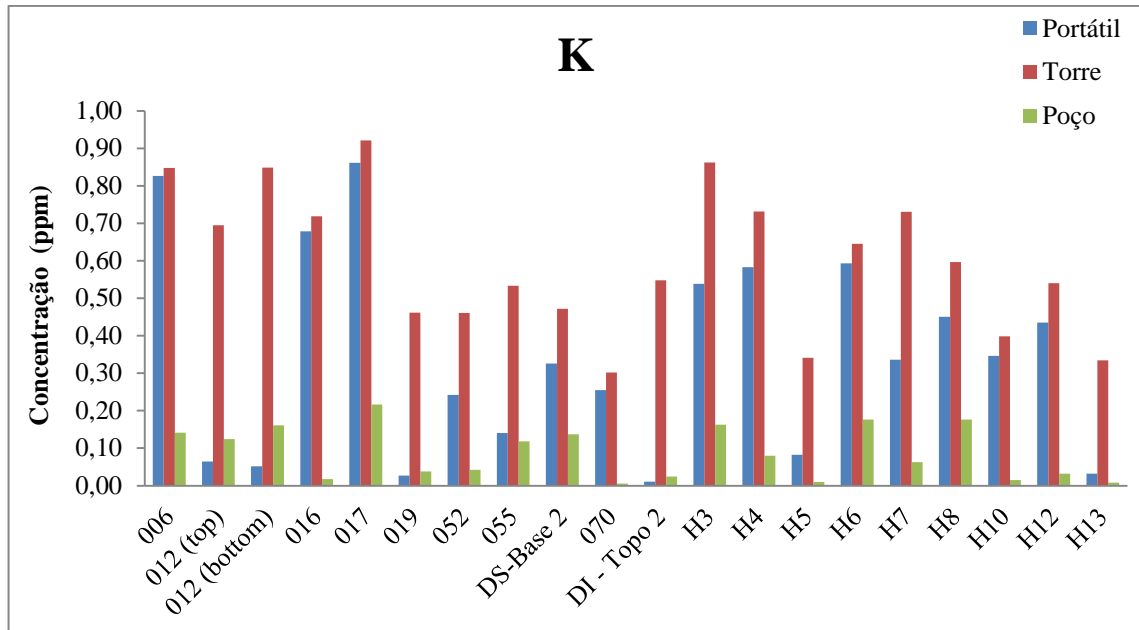


Fonte: Autoria própria.

Outra constatação relevante é a de que ao se comparar os 3 detectores, nota-se que, no caso do urânio e do potássio, as leituras tendem a ser maiores no detector Torre (Planar), em relação ao Poço e ao Portátil. Já para tório, as leituras tendem a ser menores no detector Torre (Planar) em relação ao Poço e ao Portátil (Figura 43). Os apêndices B e C contêm as tabelas sínteses para as leituras realizadas nos gama espectrômetros Poço e Torre.

Figura - 43 - Gráficos para as leituras de Urânio, Tório e Potássio nos detectores de iodeto de sódio.





Fonte: Autoria própria.

6.4 Aplicabilidade do detector portátil Digidart na análise de amostras da Formação Irati

As 111 amostras da Formação Irati foram lidas no detector *Digidart*, nas mesmas condições experimentais descritas no Capítulo 4. Algumas amostras exibiram resultados abaixo do limite de detecção, calculado conforme a Equação 31 e destacadas em vermelho na Tabela 8. Observou-se boa variação entre os resultados (1,12 a 200,57 ppm para urânio, 1,18 a 227,68 ppm para tório e 0,01 a 1,67 % para potássio), além de leituras maiores para tório do que para urânio de cerca de duas a três vezes. Os dados obtidos estão ilustrados na Tabela 8. A Figura 44 ilustra a distribuição dos dados obtidos para todas as amostras, os dados referentes ao potássio foram multiplicados por 100, para melhorar a visualização.

Tabela 8 - Resultados obtidos na análise das amostras da Formação Irati. Em vermelho, as amostras abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.

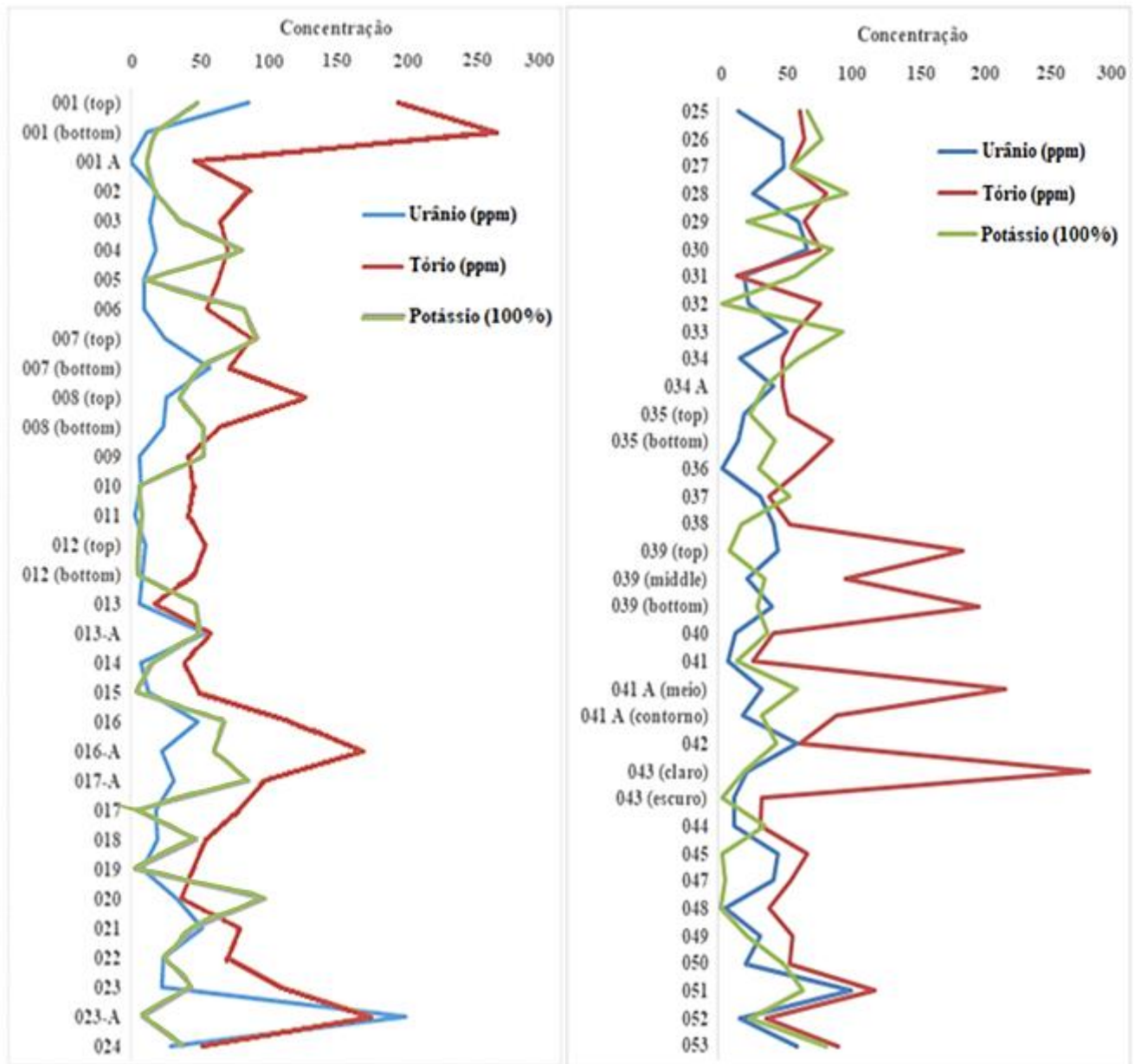
Amostra	Descrição	eU (ppm)	eTh (ppm)	K (%)
001 (top)		85,97	195,30	0,49
001 (bottom)	Base	11,21	266,26	0,17
001 A		19,12	47,71	0,11
002		18,17	85,99	0,17
003	Superior	13,78	65,03	0,35
004	Médio/superior	18,46	70,83	0,81
005	Médio	9,78	64,44	0,11
006	Médio/inferior	9,65	55,67	0,83

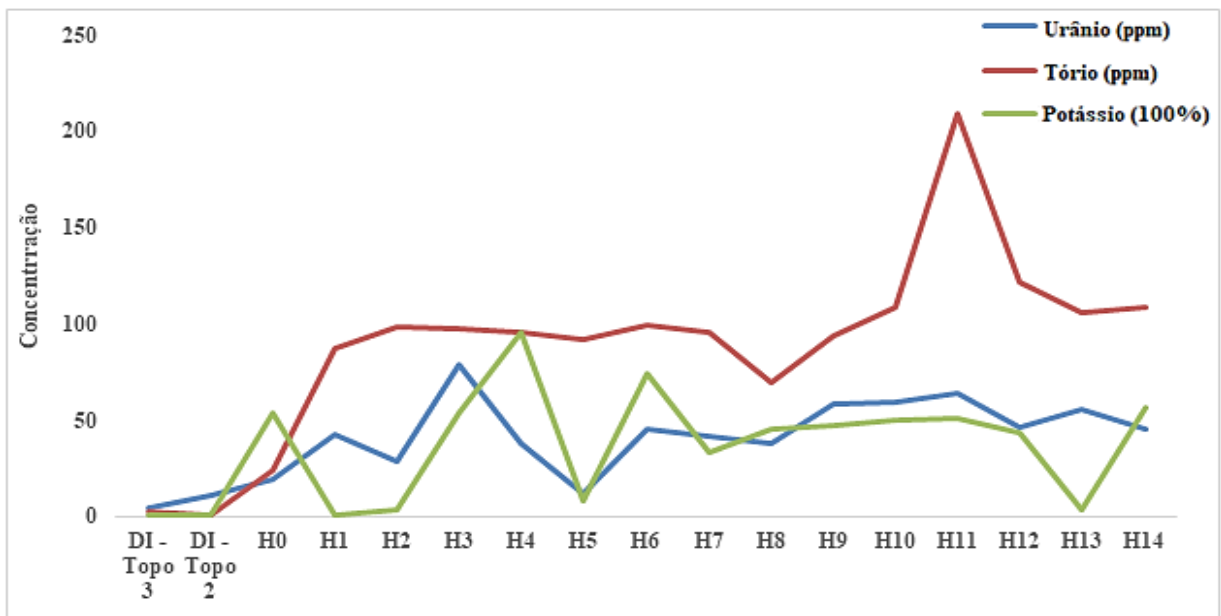
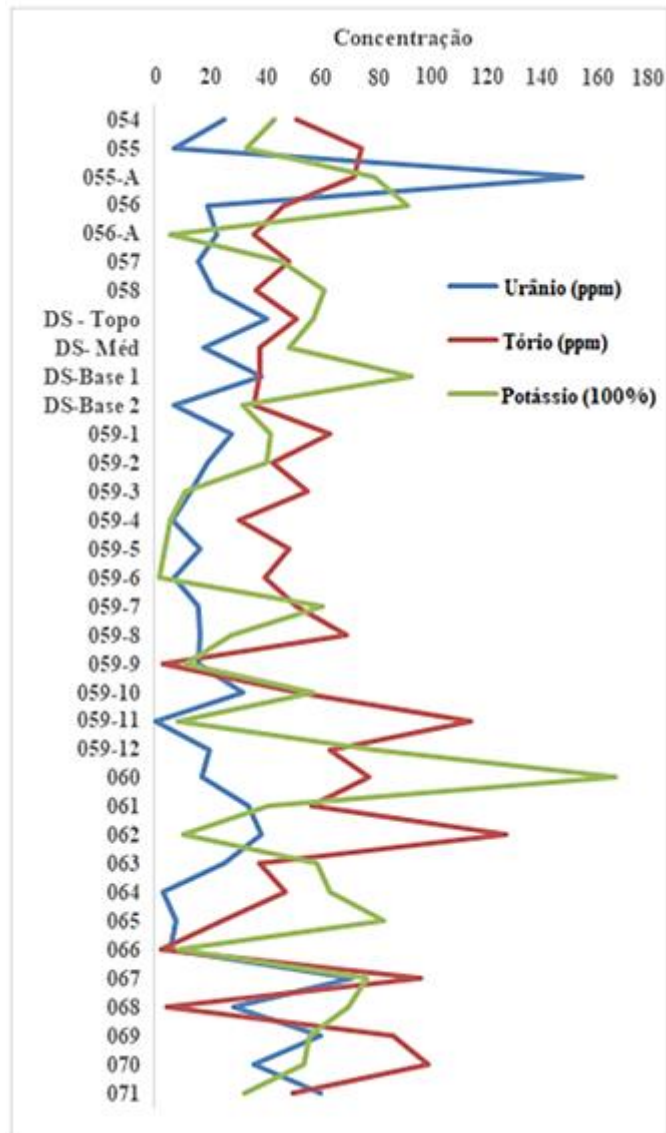
007 (top)	Inferior	24,74	87,64	0,93
007 (bottom)		57,90	72,01	0,50
008 (top)	Base	25,83	127,04	0,35
008 (bottom)		23,67	64,96	0,53
009		5,83	41,70	0,53
010	Superior	7,52	44,89	0,06
011	Médio	3,08	41,80	0,09
012 (top)	Médio/Inferior	10,3	54,25	0,06
012 (bottom)		8,48	46,35	0,05
013	Inferior	5,98	17,04	0,47
013-A	Base	54,65	58,73	0,51
014		6,74	38,39	0,16
015	Superior (6)	12,88	49,73	0,04
016	Folhelho (5)-(6)	48,45	116,08	0,68
016-A	Calcário (5)	22,63	169,75	0,61
017-A	Folhelho (4)-(5)	30,97	96,67	0,86
017	Calcário (4)	17,76	79,58	0,04
018	Folhelho (2)	18,75	54,39	0,47
019	Calcário (1)	8,04	45,77	0,03
020	Folhelho	33,8	36,67	0,98
021	Superior	51,62	79,11	0,46
022	Médio/superior	23,32	70,73	0,24
023	Médio (folhelho)	22,35	109,73	0,44
023-A	Inferior	200,57	175,32	0,08
024	Superior (folhelho)	28,88	53,37	0,38
025	Médio (calcário)	15,3	60,93	0,66
026	Inferior (folhelho)	48,02	64,22	0,78
027	Inferior	48,8	54,84	0,55
028	Superior	25,79	80,94	0,96
029	Inferior	59,48	64,30	0,22
030	Superior	66,46	76,55	0,85
031	Inferior	18,88	13,46	0,58
032	Superior	22,24	76,29	0,02
033	Inferior	50,84	57,71	0,93
034	Folhelho	16	48,33	0,60
034 A	Inferior	41,71	47,83	0,34
035 (top)	Superior	19,17	52,41	0,24
035 (bottom)		15,38	84,73	0,42
036	Base	2,83	62,93	0,31
037	Superior	31,82	38,35	0,54
038	Inferior	40,78	53,32	0,17
039 (top)	Calcário (5)	44,18	182,82	0,09
039 (middle)	(5) duplicata	21,83	95,28	0,34
039 (bottom)		40,30	194,90	0,29

040	Folhelho (4)	12,77	41,54	0,37
041	Calcário (5)	6,82	26,09	0,14
041 A (meio)		32,56	215,06	0,59
041 A (contorno)		17,89	88,39	0,32
042	Folhelho (2)	58,6	61,02	0,43
043 (claro)	Calcário (1)	21,12	277,68	0,19
043 (escuro)		12,13	32,74	0,02
044	Escuro	11,46	31,40	0,35
045	Superior	44,38	66,88	0,03
047		41,54	54,81	0,05
048		4,65	37,58	0,02
049	Folhelho	31,54	55,27	0,22
050	Superior (7)	20,91	53,13	0,49
051	Folhelho (7A)	99,65	116,63	0,63
052	Calcário (6)	15,75	35,36	0,24
053	Folhelho (5)	58,82	89,99	0,81
054	Calcário (4)	26,03	51,57	0,44
055	Calcário (3)	7,4	75,53	0,34
055-A	Folhelho (2)	154,94	72,83	0,80
056	Folhelho (2)	19,62	47,01	0,92
056-A	Base contato diabase lado esquerda (2)+(3)	23,36	36,45	0,06
057	Base	16,66	49,20	0,47
058	Lado B12 direito contato com diabásio	21,47	36,94	0,62
DS - Topo	Topo do diabásio superior	40,8	51,66	0,58
DS- Méd	Meio do diabásio superior	18,38	38,75	0,49
DS-Base 1	Base do diabásio superior	38,79	38,22	0,94
DS-Base 2	Base do diabásio superior	7,58	36,12	0,33
059-1	1	28,44	63,84	0,42
059-2	1 e 2	19,42	43,23	0,41
059-3	2	13,76	56,02	0,12
059-4	3	7,30	31,20	0,06
059-5	4	16,90	48,85	0,04
059-6	4 + 5	7,91	40,54	0,02
059-7	5	16,06	51,81	0,61
059-8	5 parte inferior	16,83	69,98	0,28
059-9	6	16,16	3,49	0,12
059-10	7	32,49	52,32	0,58
059-11	8	1,12	114,52	0,09
059-12	9+10	20,17	64,05	0,81
060	Folhelho	17,73	77,88	1,67
061	Superior	34,18	57,18	0,42
062	Médio (calcário)	39,30	127,71	0,11
063	Inferior	25,70	38,31	0,59

064	Superior	3,55	47,57	0,64
065	Médio	8,04	24,85	0,83
066	Inferior	6,44	2,70	0,09
067	Superior	71,88	96,58	0,77
068	Médio (calcário)	29,33	5,09	0,70
069	Médio/inferior (calcário)	60,83	86,73	0,57
070	Inferior	36,19	99,10	0,54
071	Folhelho basal contato base de B15	60,25	50,26	0,33
DI - Topo 3	Topo diabásio abaixo B15	4,79	2,54	0,01
DI - Topo 2	Topo diabásio abaixo B15 esquerda	11,37	1,18	0,01
H0	Diabásio -5,60m	19,8	24,45	0,54
H1	0,00m contacto	42,61	86,82	0,01
H2	0,07m	29,10	98,10	0,03
H3	0,14m	78,58	97,12	0,54
H4	0,21m	38,3	96,00	0,96
H5	0,30m	11,95	91,70	0,08
H6	0,40m	45,56	99,64	0,75
H7	0,50m	41,97	95,76	0,34
H8	0,75m	38,35	69,98	0,45
H9	1,10m	58,43	94,09	0,48
H10	1,65m	59,03	108,52	0,50
H11	1,90m	63,84	209,36	0,51
H12	3,00m	46,24	121,80	0,44
H13	3,70m	55,18	105,56	0,03
H14	4,70m	45,04	109,03	0,56
Máximo			200,57	277,68
Mínimo			1,12	1,18
Média			31,07	73,14

Figura 44- Variação das medidas para os radioelementos urânio, tório e potássio nas amostras de rochas da Formação Irati obtidas com o detector Portátil.

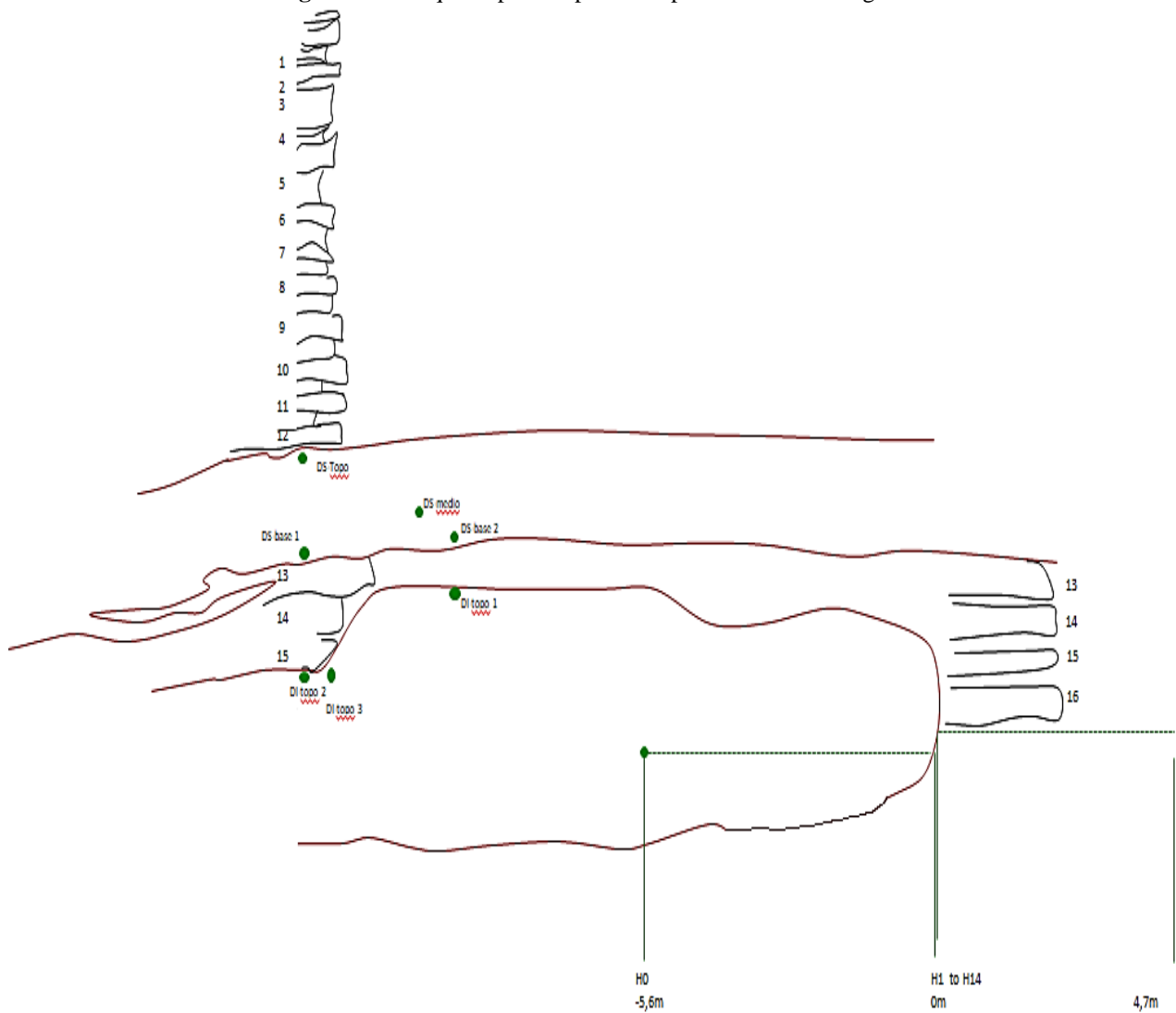




Fonte: Autoria própria.

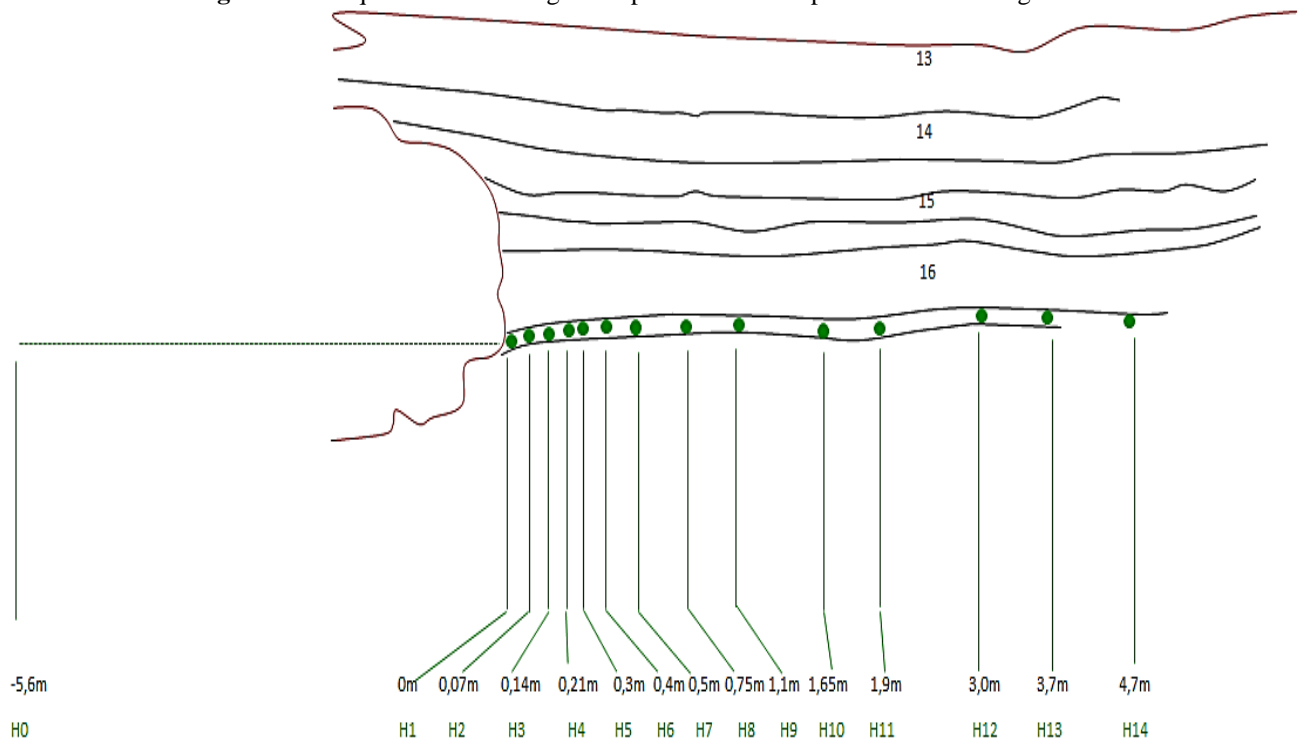
Relativamente à amostragem, esta foi feita ao longo do paredão (Figuras 32 a 34) dividido em 3 partes, as quais consistem em superior, meio e inferior. As amostras são de calcários, folhelhos e diabásios. A Figura 45 ilustra o esquema de amostragem para a parte superior. Já na Figura 46 está o esquema da parte inferior do paredão de amostragem. O meio do paredão está ilustrado na Figura 33.

Figura 45- Croqui da parte superior do paredão de amostragem.



Fonte: Descrição realizada pelo geólogo Mitsui Arai, UNESPetro-Centro de Geociências Aplicadas ao Petróleo.

Figura 46 - Esquema de amostragem da parte inferior do paredão de amostragem.



Fonte: Descrição realizada pelo geólogo Mitsui Arai, UNESPetro-Centro de Geociências Aplicadas ao Petróleo

Para melhor interpretação dos dados, dividiu-se todas as amostras por categorias: folhelhos, calcários e diabásios. As tabelas 9 a 11 ilustram os valores obtidos para cada categoria. Para as amostras de calcário, a variação foi de 1,12 a 200,57 ppm para urânio, 2,70 a 277,68 ppm para tório e 0,02 a 0,96 % para potássio. Já para as amostras de folhelhos, foi de 12,77 a 154,94 ppm para urânio, 36,67 a 116,63 ppm para tório e 0,22 a 1,67 % para potássio. No caso dos diabásios, observou-se alternância de valores de 4,79 a 78,58 ppm para urânio, 1,18 a 209,36 ppm para tório e 0,01 a 0,96 para potássio. Esses resultados foram submetidos a análises estatísticas e foram encontradas as seguintes correlações:

-para as amostras de calcário: $r = 0,36$ (U-Th), $r = 0,11$ (U-K) e $r = -0,01$ (Th-K);

-para as amostras de folhelho: $r = 0,34$ (U-Th), $r = 0,04$ (U-K) e $r = 0,18$ Th-K;

-para as amostras de diabásio: $r = 0,72$ (U-Th), $r = 0,36$ (U-K) e $r = 0,16$ (Th-K).

Assim, foi encontrada correlação significativa entre U-Th para as amostras de diabásio.

Tabela 9 - Dados obtidos pelo *Digidart* para as amostras de calcário. Em vermelho, as amostras abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.

Amostra	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
001 (top)	85,97	195,30	0,49
001 (bottom)	11,21	266,26	0,17
001 A	19,12	47,71	0,11
002	18,17	85,99	0,17
003	13,78	65,03	0,35
004	18,46	70,83	0,81
005	9,78	64,44	0,11
006	9,65	55,67	0,83
007 (top)	24,74	87,64	0,93
007 (bottom)	57,90	72,01	0,50
008 (top)	25,83	127,04	0,35
008 (bottom)	23,67	64,96	0,53
009	5,83	41,70	0,53
010	7,52	44,89	0,06
011	3,08	41,80	0,09
012 (top)	10,3	54,25	0,06
012 (bottom)	8,48	46,35	0,05
013	5,98	17,04	0,47
013-A	6,74	38,39	0,16
014	12,88	49,73	0,04
015	12,88	49,73	0,04
016-A	22,63	169,75	0,61
017	17,76	79,58	0,04
019	8,04	45,77	0,03
021	51,62	79,11	0,46
022	23,32	70,73	0,24
023-A	200,57	175,32	0,08
025	15,30	60,93	0,66
027	48,80	54,84	0,55
028	25,79	80,94	0,96
029	59,48	64,30	0,22
030	66,46	76,55	0,85
031	18,88	13,46	0,58
032	22,24	76,29	0,02
033	50,84	57,71	0,93
034 A	41,71	47,83	0,34
035 (bottom)	15,38	84,73	0,42
036	2,83	62,93	0,31
037	31,82	38,35	0,54
038	40,78	53,32	0,17
039 (top)	44,18	182,82	0,09

039 (middle)	21,83	95,28	0,34
039 (bottom)	40,30	194,90	0,29
041	6,82	26,09	0,14
041 A (meio)	32,56	215,06	0,59
041 A (contorno)	17,89	88,39	0,32
043 (claro)	21,12	277,68	0,19
043 (escuro)	12,13	32,74	0,02
044	11,46	31,40	0,35
045	44,38	66,88	0,03
047	41,54	54,81	0,05
048	4,65	37,58	0,02
050	20,91	53,13	0,49
052	15,75	35,36	0,24
054	26,03	51,57	0,44
055	7,40	75,53	0,34
056-A	23,36	36,45	0,06
057	16,66	49,20	0,47
058	21,47	36,94	0,62
059-1	28,44	63,84	0,42
059-2	19,42	43,23	0,41
059-3	13,76	56,02	0,12
059-4	7,30	31,20	0,06
059-5	16,90	48,85	0,04
059-6	7,91	40,54	0,02
059-7	16,06	51,81	0,61
059-8	16,83	69,98	0,28
059-9	16,16	3,49	0,12
059-10	32,49	52,32	0,58
059-11	1,12	114,52	0,09
059-12	20,17	64,05	0,81
061	34,18	57,18	0,42
062	39,30	127,71	0,11
063	25,70	38,31	0,59
064	3,55	47,57	0,64
065	8,04	24,85	0,83
066	6,44	2,70	0,09
067	71,88	96,58	0,77
068	29,33	5,09	0,70
070	36,19	99,10	0,54
Máximo	200,57	277,68	0,96
Mínimo	1,12	2,70	0,02
Média	25,55	72,00	0,35

Tabela 10 - Dados obtidos com o detector *Digidart* para as amostras de folhelho.

Amostra	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
016	48,45	116,08	0,68
017-A	30,97	96,67	0,86
018	18,75	54,39	0,47
020	33,80	36,67	0,98
023	22,35	109,73	0,44
024	28,88	53,37	0,38
026	48,02	64,22	0,78
034	16,00	48,33	0,60
035 (top)	19,17	52,41	0,24
040	12,77	41,54	0,37
042	58,6	61,02	0,43
049	31,54	55,27	0,22
051	99,65	116,63	0,63
053	58,82	89,99	0,81
055-A	154,94	72,83	0,80
056	19,62	47,01	0,92
060	17,73	77,88	1,67
069	60,83	86,73	0,57
071	60,25	50,26	0,33
Máximo	154,94	116,63	1,67
Mínimo	12,77	36,67	0,22
Média	44,27	70,05	0,64

Tabela 11 - Dados obtidos com o detector *Digidart* para as amostras de diabásio. Em vermelho, amostra abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.

Amostra	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
DS - Topo	40,8	51,66	0,58
DS- Méd	18,38	38,75	0,49
DS-Base 1	38,79	38,22	0,94
DS-Base 2	7,58	36,12	0,33
DI - Topo 3	4,79	2,54	0,01
DI - Topo 2	11,37	1,18	0,01
H0	19,80	24,45	0,540391
H1	42,61	86,82	0,01
H2	29,10	98,10	0,03
H3	78,58	97,12	0,54
H4	38,30	96,00	0,96
H5	11,95	91,70	0,08
H6	45,56	99,64	0,75
H7	41,97	95,76	0,34

H8	38,35	69,98	0,45
H9	58,43	94,09	0,48
H10	59,03	108,52	0,50
H11	63,84	209,36	0,51
H12	46,24	121,80	0,44
H13	55,18	105,56	0,03
H14	45,04	109,03	0,56
Máximo	78,58	209,36	0,96
Mínimo	4,79	1,18	0,01
Média	37,89	79,83	0,41

Para a amostragem dos diabásios na horizontal (Figura 46) e os dados obtidos constam na Tabela 12. As variações observadas são menores do que as encontradas em comparação aos outros diabásios, o que já é esperado por se tratar de um mesmo bloco de amostra. Os dados de potássio são os que exibem maiores variações de 0,01 a 0,96 %.

As correlações encontradas para essas amostras são $r = 0,51$ (U-Th), $r = 0,24$ (U-K) e $r = 0,05$ (Th-K), não sendo significantes.

Maiores investigações fazem-se necessárias para melhor compreensão destas variações.

Tabela 12 - Dados obtidos com o detector *Digidart* para as amostras de diabásio (horizontal). Em vermelho, amostra abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.

Amostra	Descrição	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)
H0	diabásio -5,60m	19,80	24,45	0,54
H1	0,00m contact	42,61	86,82	0,01
H2	0,07m	29,10	98,10	0,03
H3	0,14m	78,58	97,12	0,54
H4	0,21m	38,30	96,00	0,96
H5	0,30m	11,95	91,70	0,08
H6	0,40m	45,56	99,64	0,75
H7	0,50m	41,97	95,76	0,34
H8	0,75m	38,35	69,98	0,45
H9	1,10m	58,43	94,09	0,48
H10	1,65m	59,03	108,52	0,50
H11	1,90m	63,84	217,70	0,51
H12	3,00m	46,24	121,80	0,44
H13	3,70m	55,18	105,56	0,03
H14	4,70m	45,04	109,03	0,56
Máximo		78,58	217,70	0,96
Mínimo		11,95	24,45	0,01
Média		44,93	101,08	0,41

7. CONCLUSÃO

Os resultados obtidos neste trabalho indicaram boa resposta dos gamaespectrômetros baseados nos detectores de cintilação de NaI(Tl) para a análise das amostras de rochas da Formação Irati, por permitirem longos tempos de leitura.

Para estes detectores, a análise estatística dos dados obtidos indicou valores significativos do coeficiente de correlação de Pearson e valor P entre os cristais tipo Torre (Planar) e Poço, isto é, para tório $r = 0,75$ e $P = 0,0001$ e para potássio $r = 0,71$ e $P = 0,0005$, sendo considerados como estatisticamente extremamente significantes.

Outras duas correlações significativas também foram encontradas entre os detectores Portátil e Torre, as quais correspondem aos valores de $r = 0,53$ e $P = 0,0162$ para urânio e $r = 0,59$ e $P = 0,0062$ para tório e potássio, sendo estatisticamente muito significantes. Uma última correção estatisticamente significativa foi encontrada entre os detectores Portátil e Poço para potássio com valores de $r = 0,46$ e $P = 0,0413$.

A excelente correlação encontrada entre os detectores Torre e Poço para o radionuclídeo tório já era esperada, por conta da construção muito semelhante dos detectores, seja na eletrônica, na blindagem ou no próprio detector, divergindo apenas em sua geometria.

Relativamente ao detector Digidart, este exibiu leituras maiores para tório do que para urânio de cerca de duas a três vezes, além de exibir boas correlações com o detector Torre para os três radionuclídeos analisados neste trabalho. É válido ressaltar que este detector foi o único em que algumas leituras ficaram abaixo do Limite de Detecção.

Já o espectrômetro BGO não apresentou variabilidade significativa nos resultados, tanto para as amostras pulverizadas quanto para as amostras de bloco de rochas, aliás, os dados obtidos para as amostras pulverizadas, com blindagem no detector, exibiram valores mais baixos em relação aos blocos de rocha bruta, provavelmente, devido a eliminação de efeitos externos na amostra devido à blindagem e a redução da área de emissão de raios gama por conta do uso da cápsula porta amostra. Devido à baixa radioatividade das amostras, este detector não é adequado para a análise das amostras de rocha da Formação Irati, pois, há limitação em seu tempo de leitura, o máximo correspondendo a 30 minutos, o que interfere de forma significativa em sua performance para amostras de baixa radioatividade. Entretanto, é importante ressaltar que esse detector poderá ter um melhor desempenho na análise de amostras mais radioativas.

REFERÊNCIAS

- ADAMS, J. A. S.; FREYER, G. E. **Portable ray spectrometer for field determination of thorium, uranium and potassium.** In: ADAMS, J. A. S.; LOWDER, W. M. (Edits). *The natural radiation environment.* Chicago: University of Chicago Press, p. 577-596, 1964.
- AMARAL, S. E. **Contribuição ao conhecimento geológico, petrográfico e sedimentológico da Formação Irati, no Estado de São Paulo.** Tese (Livre Docência) - Instituto de Geociências, Universidade de São Paulo, São Paulo (SP), 1967, 136f, 1967.
- ATTIX, F.H. **Introduction to Radiological Physics and Radiation Dosimetry.** 1.ed. Madison, W.I,1986.
- BACCOUCHE, S.; AL-AZMI, D., KARUNAKARA, N.; Trabelsi, A. **Application of the Monte Carlo method for the efficiency calibration of CsI and NaI detectors for gamma-ray measurements from terrestrial samples.** *Applied Radiation and Isotopes*, v.70, n.1, 2012, p.227–232, 2012.
- BARBOSA, E. Q. **Calibração de detectores cintiladores e sua aplicação em medidas radiométricas.** Dissertação (Mestrado em Geociências (Geociências e Meio-Ambiente)) - Universidade Estadual Paulista Júlio de Mesquita Filho, Rio Claro (SP), 2016.
- BARBOSA, O.; GOMES, F. A. **Pesquisa de petróleo na bacia do rio Corumbataí.** Rio de Janeiro, Boletim do DNPM/DGM. 171: 40p, 1958.
- BRITO, S. H. B. **O Espectro eletromagnético na natureza.** Blog LabCisco. Disponível online em < <http://labcisco.blogspot.com/2013/03/o-espectro-eletromagnetico-na-natureza.html> > Acesso em 25 de Junho de 2021, 2013.
- CHERRY, S.R.; SORENSON, J.A.; PHELPS, M.E. **Physics in Nuclear Medicine.** 3.ed., Pennsylvania, P.A.: Philadelphia, 2003.
- CULLITY, B. D. **Elements of X-Ray Diffraction, Addison-Wesley.** 1968.
- CURRIE, L. A. **Limits for Qualitative Detection and Quantitative Determination.** *Anal. Chem*, 40, 586-593, 1968.
- CPRM (Serviço Geológico do Brasil). 2020. **Shapefiles.** Disponível em < <https://geosgb.cprm.gov.br/geosgb/downloads.html> >. Acesso em 25 de Maio de 2020.

DUARTE, C.R., BONOTTO, D.M. **Calibração em energia e concentração de espectrômetro gama para análise de U, Th e K.** Geociências, v. 19, 2000, p. 313-319, 2000.

DUARTE, C.R., BONOTTO, D.M. **Radioelementos Naturais na Área do projeto Rio Preto (GO).** Rio Claro: UNESP - Instituto de Geociências e Ciências Exatas, 2002.

EVANS, R. D., NOYAU, A. **The atomic nucleus.** New York : Mcgraw-Hill, 1955.

HOLZ, M.; FRANÇA, A.B.; SOUZA, P.A.; IANNUZZI, R.; ROHN, R. **A stratigraphic chart of the Late Carboniferous/Permian succession of the eastern border of the Paraná Basin, Brazil, South America.** Journal of South American Earth Sciences, 29, 381–399, 2010.

IAEA, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Construction and Use of Calibration Facilities for Radiometric Field Equipment, Technical Reports Series.** Viena, Áustria, 309p, 1989.

IAEA, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **X-ray and gamma-ray standards for detector calibration.** Viena, Áustria, 151p, 1991.

IAEA, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data.** Vienna, Austria: IAEA-TECDOC-1363. 172 p, 2003. ISSN 1011–4289.

IAEA, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. **Detectores de radiação.** Disponível em: <https://inis.iaea.org/collection/NCLCollection_Store/Public/45/073/45073471.pdf> Acesso em 13 de Maio de 2021.

IAEA, INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY 2014. **Interação da radiação com a matéria.** Disponível em: < https://inis.iaea.org/collection/NCLCollectionStore/_Public/45/073/45073468.pdf >. Acesso em 23 de Maio de 2021.

ICRU. **Gamma ray Spectrometry in the Environment.** Bethesda, USA : International Commission On Radiation Units and Measurements, ICRU Report 53, 1994.

KAKOI, A. A. Y. **Análise da metodologia de calibração dos detectores de NaI(Tl) do laboratório de monitoração in Vivo do IPEN pelo método de Monte Carlo.** Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Dissertação de Mestrado, São Paulo, 2013.

KNOLL, G.F. **Radiation Detections and Measurement**. 3.ed. Michigan, M.I.: Ann Arbor, 2000.

KPMG. **Outlook 2014**. KPMG Global Energy Institute, 2014.

LAGES, L. C. **A Formação Irati (Grupo Passa Dois, Permiano, Bacia do Paraná) no furo de sondagem FP-01-PR (Sapopema, PR)**. 2004,117 f., Dissertação (mestrado) – Universidade Estadual Paulista, Instituto de Geociências e Ciências Exatas, 2004

LEITH, C. K.. **World minerals and world politics: a factual study of minerals in their political and international relations**. Whittlesey House, McGraw-Hill Book Company, Incorporated, 1931.

LIMA, C. A. **Avaliação da performance dos detetores Iodeto de Sódio NaI (TI) em centrais nucleares**. Tese de Doutorado, Rio de Janeiro (RJ): Universidade federal do Rio de Janeiro, 109p, 2006.

LIMA, J. L. N.; BONOTTO, D. M. **Etapas analíticas para mensuração de radônio-222 e uso na avaliação da radioatividade das águas de Águas da Prata (SP)**. Rio Claro (SP), Brasil: Geochimica Brasiliensis, v. 10, n. 2, p. 283-295, 1996.

MARASCHIN, A. J; RAMOS, A. S. **Breve abordagem histórica sobre o potencial energético dos folhelhos da formação Irati (bacia do Paraná) no estado do Rio Grande do Sul**. Boletim Geográfico do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, n. 25, ago., p. 174-183, 2015.

McKEE, R. H. **Shale Oil**. New York. Chemical Catalog Co, 1925.

MILANI, E. J.; FRANÇA, A. B.; MEDEIROS, R. A. **Rochas geradoras e rochas reservatório da Bacia do Paraná, faixa oriental de afloramentos, Estado do Paraná**. Boletim de Geociências da Petrobras, Rio de Janeiro, v. 15, n. 1, 135-162 p, 2006.

MILANI, E. J.; MELO, J. H. G.; SOUZA, P. A.; FERNANDES, L. A.; FRANÇA, A. B. **Bacia do Paraná**. Boletim de Geociências da Petrobrás, 15, 265-287 p, 2007.

NIST, NATIONAL INSTITUTE OF STANDARDS AND TECHNOLOGY. **Physical Measurement Laboratory, Physical Reference Data, X-Ray and Gamma-Ray Data:**

XCOM: Photon Cross Sections Database. Disponível em < <http://physics.nist.gov/PhysRefData/Xcom/html/xcom1.html> > Acesso em 30 jan. 2014.

PEO, RADIATION TECHNOLOGY. **RS-230 BGO Handheld Spectrometer - Radiation Solutions,** 2014. Disponível em < <http://www.peo-radiation-technology.com/en/product/rs-230-bgo-handheld-spectrometer-radiation-solutions/> >. Acesso em: 21 Abril de 2021.

ROVERATTI, G.; BONOTTO, D.M.; SANTOS, S. N.; BARROS, O. A. N. 2020. **Aplicação de semicondutores em gama espectrometria portátil.** Linguagem Acadêmica, v. 10, 29-48 p, 2020.

SANTOS NETO, E.V. **Caracterização geoquímica e paleoambiente deposicional da seqüência carbonato-pelítica superior do Membro Assistência, Formação Irati no Estado de São Paulo, Bacia do Paraná.** Dissertação de Mestrado em Geociências, Instituto de Geociências, Universidade Federal do Rio de Janeiro. Rio de Janeiro, 203 p, 1993.

SLATT, R. M. **Important geological properties of unconventional resource shales.** Central European Journal of Geosciences, v. 3, n. 4, 435 - 448 p, 2011.

TAUHATA, L.; SALATI, I.P.A.; DI PRINZIO R.; DI PRINZIO, A. **Radioproteção e Dosimetria: Fundamentos.** 3ª Revisão, IRD/CNEN, Rio de Janeiro, R.J.: Rio de Janeiro, 2001.

TAUHATA, L.; SALATI, I. P., DI PRINZIO, R.; DI PRINZIO, A. **Radioproteção e Dosimetria, Fundamentos.** s.l. : IRD/CNEN, 2014. 10ª revisão, 2014.

VILLA, M. B.; COSTA, A. M. da. **Estudo da função Resposta de um detector cintilador de NaI(Tl).** Internationaljoint Conference RADIO Gramado, RS, Brazil, Augustl 26-29, SOCIEDADEBRASILEIRA DEPROTEÇÃO RADIOLÓGICA - SBPR. 2014.

VITORELLI, J.C.; SILVA, A.X.; CRISPIM,V.R FONSECA, E.S.; PEREIRA, W.W. **Monte Carlo simulation of response function for a NaI(Tl) detector for gamma rays from ²⁴¹Am/Be source.** Applied Radiation and Isotopes, v.62, n.4, 619–622 p, 2005.

WHITE, I.C. **Relatório sobre as “Coal Measures” e rochas associadas do Sul do Brasil.** In: Relatório Final apresentado ao S. Ex. o Dr. Lauro Severiano Muller, Ministro da

Industria, Viação e Obras Publicas, 19est., 2 mapas, Imprensa Nacional, Rio de Janeiro, 300p, 1908.

YOSHIMURA, E.M. **Física das Radiações: interação da radiação com a matéria.** Revista Brasileira de Física Médica, n. 3(1), 57-67 p. 2009.

APÊNDICE A (TABELA SÍNTESE DAS LEITURAS PARA O DETECTOR BGO)

Amostra	eU (ppm)	eTh (ppm)	K (%)
001	3,10	11,00	1,00
001-A	3,10	11,00	1,00
002	3,00	10,70	1,00
003	3,00	10,60	1,00
004	3,30	10,00	0,90
005	3,30	10,80	1,00
006	3,20	10,50	1,00
007	3,20	10,40	1,00
008	3,40	10,00	0,90
009	3,30	10,90	1,00
010	3,10	11,00	1,00
011	3,30	10,60	1,00
012	3,20	10,60	1,00
013	3,10	10,70	1,00
013-A	3,50	10,30	1,00
014	3,40	10,30	1,00
015	3,10	10,50	1,00
016	3,50	10,60	1,00
016-A	3,40	9,90	0,90
017-A	3,50	10,00	1,00
017	3,40	10,70	0,90
018	3,50	10,50	1,00
019	3,40	10,00	0,90
020	3,10	10,60	1,00
021	3,50	10,40	1,00
022	3,40	10,00	0,90
023	3,00	10,70	1,00
023-A	3,50	10,00	0,90
024	3,70	10,70	1,00
025	3,20	10,80	1,00
026	3,60	10,60	1,00
027	3,40	11,20	0,90
028	3,50	10,60	1,00
029	4,20	11,00	1,00
030	4,00	10,50	1,00
031	5,20	10,60	1,00
032	3,50	10,00	0,90
033	3,10	10,30	1,00
034	3,70	10,80	1,00
034-A	3,40	10,00	0,90
035	3,20	10,30	0,90
036	3,50	10,60	1,00
037	3,30	11,30	1,00
038	3,60	11,10	1,00
039	3,40	10,80	1,00

039	3,20	10,30	1,00
040	3,30	10,30	1,00
041	3,50	10,70	1,00
042	3,10	10,70	1,00
042-A	3,30	10,90	0,90
044	3,00	10,50	1,00
045	3,20	9,60	0,90
047	3,20	10,40	1,00
048	3,10	10,10	1,00
049	3,50	10,10	0,90
050	3,30	10,90	1,00
051	3,30	10,40	0,90
052	3,10	11,00	0,90
053	3,30	10,50	0,90
054	3,20	10,50	1,00
055	3,20	10,50	1,00
055-A	3,00	10,50	1,00
056	3,20	10,00	1,00
056-A	3,30	10,10	1,00
057	3,40	10,50	0,90
058	3,20	11,60	1,00
DS - Topo	3,20	10,60	1,00
DS- Méd	3,10	10,60	1,00
DS-Base 1	3,30	10,50	1,00
DS-Base 2	3,10	11,20	1,00
059-1	3,00	10,00	1,00
059-2	3,30	10,70	1,00
059-3	3,30	10,90	1,00
059-4	3,50	10,60	1,00
059-5	3,10	10,90	1,00
059-6	3,30	10,80	1,00
059-7	3,10	10,80	1,00
059-8	3,20	10,00	1,00
059-9	3,90	10,70	1,00
059-10	3,80	10,70	0,90
059-11	3,10	10,80	0,90
059-12	3,20	10,80	0,90
DI - Topo 1	3,00	11,00	1,00
060	3,40	11,00	1,00
061	3,30	10,30	0,90
062	3,20	10,10	1,00
063	2,80	11,40	0,90
064	3,60	10,50	1,20
065	6,40	10,90	1,00
066	3,60	10,9	0,90
067	3,00	10,6	1,00

068	3,30	10,10	1,00
069	3,30	10,70	1,00
070	3,30	10,00	1,00
071	3,60	10,40	1,00
DI - Topo 3	3,20	10,80	1,00
DI - Topo 2	3,20	10,00	1,00
H0	3,30	11,00	1,00
H1	3,50	10,30	1,00
H2	3,30	10,40	1,00
H3	3,20	10,90	0,90
H4	3,40	10,90	1,00
H5	3,30	11,00	1,00
H6	3,20	10,70	1,00
H7	3,40	10,70	1,00
H8	3,40	11,00	1,00
H9	3,30	10,50	1,00
H10	3,40	10,10	1,00
H11	3,80	10,10	1,00
H12	3,30	10,00	0,90
H13	3,20	10,60	1,00
H14	3,30	10,30	1,00

APÊNDICE B (TABELA SÍNTESE DAS LEITURAS PARA O DETECTOR POÇO)

Em vermelho, amostra abaixo do limite de detecção do gamaespectrômetro.

Amostra	eU (ppm)	eTh (ppm)	K (ppm)
001 (top)	29,18	70,44	0,05
001 (bottom)	12,38	17,42	0,16
006	4,88	17,19	0,14
009	3,05	20,76	0,09
012 (top)	7,16	39,82	0,12
012 (bottom)	6,76	29,17	0,16
016	63,71	104,12	0,02
017	11,53	69,55	0,22
017-A	8,81	11,75	0,08
019	9,94	48,84	0,04
029	13,44	30,19	0,05
031	24,37	77,62	0,15
040	8,37	3,94	0,01
045	8,44	27,51	0,04
047	20,73	57,29	0,16
048	12,77	48,44	0,11
049	26,34	46,68	0,05
050	10,72	50,90	0,04
052 (bottom)	39,73	91,22	0,04
055	10,86	35,53	0,12
055-A	15,59	40,35	0,13
059/1	22,96	54,03	0,02
059/2	15,29	47,44	0,07
059/3	10,28	33,44	0,08
059/4	15,73	18,61	0,10
059/5	11,82	40,18	0,11
059/12	11,29	28,59	0,08
060	117,49	92,16	12,00
061	14,11	20,98	0,03
064	6,22	26,36	0,05
066	9,78	25,90	0,09
070	6,84	54,73	0,01
071	12,73	33,76	0,07
H 3	7,37	36,67	0,16
H 4	22,68	52,12	0,08
H 5	8,65	44,39	0,01
H 6	11,52	61,70	0,18
H 7	8,82	63,75	0,06
H 8	18,21	70,45	0,18
H 10	16,41	55,61	0,01
H 12	23,87	64,67	0,03
H 13	28,64	45,27	0,01
DS - Base 1	4,10	5,01	0,11
DS - Base 2	9,89	43,36	0,14
DS - Topo	2,98	7,96	0,09

DS - Parte media	5,07	45,86	0,11
Topo 2	14,21	32,24	0,02

APÊNDICE C (TABELA SÍNTESE DAS LEITURAS PARA O DETECTOR TORRE)

Amostra	eU (ppm)	eTh (ppm)	K (ppm)
001 A	65,08	17,78	1,37
002	5,95	52,68	1,67
003	30,34	23,55	0,96
004 Tij	19,26	13,41	0,35
005	17,42	26,11	1,63
006	11,28	14,26	0,85
007 (top)	18,75	12,14	0,05
007 (bottom)	14,02	12,46	0,21
008 (top)	30,29	7,85	0,30
008 (bottom)	15,04	5,43	0,14
010	11,43	19,48	0,27
011	10,35	23,40	0,73
012 (top)	27,66	29,86	0,69
012 (bottom)	13,36	4,17	0,85
013	5,34	23,85	0,87
013 A	49,62	73,34	0,18
014	20,31	33,39	0,82
015	23,82	28,07	0,32
016	46,78	94,10	0,72
016A	17,64	55,27	0,76
017	33,71	65,86	0,92
018	23,97	80,33	1,05
019	5,43	42,39	0,46
020	34,78	31,24	0,64
021	14,37	59,85	0,83
022	39,61	83,81	0,42
023	22,32	77,89	0,44
023-A	115,72	135,71	0,53
024	34,44	77,37	0,61
025	20,44	66,03	0,64
026	57,01	92,24	0,36
027	46,96	92,20	0,36
028	28,87	92,50	0,26
030	59,57	96,34	0,43
032	30,84	65,25	0,15
033	10,73	68,83	0,27
034	29,79	47,08	0,23
034-A	40,36	48,24	0,58
035 (top)	23,40	62,11	0,45
035 (bottom)	22,51	70,56	0,36
036	37,94	70,13	0,48
037	35,63	29,68	0,46
038	50,93	62,42	0,44
039 (top)	47,34	171,98	1,09
039 (middle)	31,28	68,33	0,25

039 (bottom)	41,88	132,64	1,80
041	40,67	84,18	0,48
041A (meio)	40,74	7,22	0,86
041A (contorno)	11,85	28,75	0,81
042	61,77	77,53	0,27
043 (claro)	60,00	96,49	1,98
043 (escuro)	21,16	21,23	0,11
044	57,17	16,82	0,64
051	39,70	66,40	0,53
052 (bottom)	41,80	33,04	0,46
053	67,41	104,55	0,23
054	25,20	72,20	0,33
055	38,37	32,61	0,53
056	21,13	27,67	0,53
056 A	23,23	42,00	0,83
057	15,39	36,91	0,69
058	66,17	22,09	0,68
059/6	10,98	13,44	0,24
059/7	13,82	10,09	0,71
059/8	54,42	38,44	0,87
059/9	25,83	16,91	0,71
059/10	37,10	51,85	0,89
062	91,62	42,22	0,09
065	85,29	76,67	0,46
067	33,18	55,34	0,68
068	29,95	28,31	0,88
069	3,67	94,42	0,82
070	38,73	73,24	0,30
HO	10,41	57,81	0,32
H 1	44,52	25,18	0,40
H 2	38,51	54,26	0,45
H 3	79,58	35,85	0,86
H 4	44,61	26,01	0,73
H 5	79,51	29,67	0,34
H 6	72,34	60,39	0,64
H 7	50,60	63,34	0,73
H 8	55,36	68,96	0,60
H 9	65,25	29,53	0,89
H 10	63,29	53,70	0,40
H 11	29,16	46,36	0,11
H 12	46,97	61,79	0,54
H 13	59,52	41,18	0,33
H 14	89,93	40,22	0,36
DS - Base 2	27,60	19,10	0,47
Topo 2	32,50	31,53	0,55
Topo 3	32,24	44,73	0,55