

UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR
COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR
CENTRO REGIONAL DE CIÊNCIAS NUCLEARES DO NORDESTE
Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares

**AVALIAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS PRIMORDIAIS EM SOLOS
NATIVOS COM DIFERENTES ATIVIDADES AGRÍCOLAS NO ESTADO
DE PERNAMBUCO**

JOSÉ DE ALMEIDA MACIEL NETO

Orientador: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral
Departamento de Energia Nuclear - UFPE

Coorientador: Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior
Departamento de Energia Nuclear - UFPE

Recife, PE
Junho, 2017

JOSÉ DE ALMEIDA MACIEL NETO

**AVALIAÇÃO DE RADIONUCLÍDEOS PRIMORDIAIS EM SOLOS
NATIVOS COM DIFERENTES ATIVIDADES AGRÍCOLAS NO ESTADO
DE PERNAMBUCO**

Tese submetida ao Programa de Pós-Graduação em
Tecnologias Energéticas e Nucleares como parte integrante
para obtenção do título de Doutor em Ciências. Área de
Concentração: Dosimetria e Instrumentação Nuclear.

Orientador: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral
Departamento de Energia Nuclear - UFPE

Coorientador: Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior
Departamento de Energia Nuclear - UFPE

Recife, PE
Junho, 2017

Catálogo na fonte
Bibliotecário Carlos Moura, CRB-4 / 1502

M152a Maciel Neto, José de Almeida.
Avaliação de radionuclídeos primordiais em solos nativos com diferentes atividades agrícolas no estado de Pernambuco. / José de Almeida Maciel Neto. - Recife: O Autor, 2017.
81 f.: il., tabs.

Orientador: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral.
Coorientador: Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior.

Tese (doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, 2017.
Inclui referências bibliográficas.

1. Radiação. 2. Ambiente. 3. Instrumentação. 4. Radionuclídeos. 5. Solo. I. Amaral, Romilton dos Santos, orientador. II. Santos Júnior, José Araújo dos, coorientador. III. Título.

CDD 621.48 (21. ed.)

UFPE
BDEN/2017-16

APROVADA EM: 16.06.2017

ORIENTADOR: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral

CO-ORIENTADOR: Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior

COMISSÃO EXAMINADORA:

Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral – DEN/UFPE

Prof. Dr. José Wilson Vieira – IFPE e UPE

Profa. Dra. Patrícia Brandão da Silveira – CRCN-NE/CNEN

Prof. Dr. Jairo Dias Bezerra – BFP- Facepe - DEN/UFPE

Prof. Dr. José Nildo Tabosa – IPA

Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior– DEN/UFPE

Visto e permitida a impressão

Coordenador(a) do PROTEN/DEN/UFPE

Tua caminhada ainda não terminou...
A realidade te acolhe
dizendo que pela frente
o horizonte da vida necessita
de tuas palavras
e do teu silêncio.

Charles Chaplin

AGRADECIMENTOS

Em primeiro lugar agradeço aos meus pais, Luiz Maciel e Carmita Maciel que me ensinaram a crer em DEUS, que me deu a vida e a permissão de chegar até aqui, e a respeitar as pessoas com humildade, gentileza e gratidão.

A minha esposa Daniela Aquino, pelo constante apoio, carinho e compreensão, nessa e em outras duras caminhadas.

Aos meus filhos, João Pedro, José Antônio e Beatriz que aprendem comigo a não temer desafios e não desanimar diante os obstáculos enfrentados, pois são eles que alimentaram a minha vontade de vencer.

Aos meus irmãos: Everardo, Márcio, Tácio, Tomaz, Ivandro, Mariza e Sandra, e aos meus sobrinhos, pela paciência e incentivo nas horas de desespero, ajudando-me em tudo o que precisei e responsáveis por me mostrar o valor da família e da verdadeira amizade na vida de um ser humano.

Em especial, ao meu professor e orientador Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral pelas suas competentes observações que contribuíram de forma inestimável para a realização deste trabalho, um verdadeiro guerreiro pelos seus alunos. Obrigado por ter acreditado em mim, pela confiança. E ao meu professor e coorientador Dr. José Araújo dos Santos Júnior, um verdadeiro amigo, atencioso, íntegro, generoso e prestativo, uma pessoa que nos momentos mais difíceis sempre teve palavras sábias e incentivadoras. Por ser essa pessoa que contribuiu intensamente para meu crescimento intelectual e pessoal, a minha eterna gratidão.

Ao comitê de acompanhamento, e aos professores e pesquisadores que participaram dos seminários de tese, do exame de qualificação e da defesa: Prof. PhD. Rômulo Simões Cezar Menezes (DEN-UFPE), Prof. Dr. José Wilson Vieira (UPE), Dr. Dário Costa Primo (DEN/PNPD), Dra. Patrícia Brandão da Silveira (Centro Regional de Ciências Nucleares - CRCN-PE), Prof. Dr. Jair de Lima Bezerra (DEN-UFPE) e Prof. Dr. Marcos Crispino (DEN-UFPE) pela colaboração. Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pela bolsa de estudos e a taxa de bancada concedidas.

Ao Grupo de Radioecologia (RAE) e ao Departamento de Energia Nuclear pela infraestrutura disponibilizada.

A todos os outros professores do DEN-UFPE pela colaboração em minha formação, e aos meus amigos Carlos Almeida, Flávio Ferreira, Iane Andrade, Isabel Spacov e Eduardo Eudes, pela amizade e o incentivo.

Aos Funcionários do DEN e aos meus amigos participantes do grupo RAE, Josineide Marques, Jairo Dias, Alberto Silva, Lino Valcárcel, Otávio Santos, Nilson Medeiros, Kennedy Francys, Bruno Amaral, Rodrigo Bezerra, Zahily Fernández e Ary Casado, profissionais que fazem valer o sentido da palavra equipe, através de gestos e atos.

A todos aqueles que participaram de forma direta ou indiretamente para minha formação, e aos colegas e professores pelo incentivo que me fez trilhar o caminho acadêmico com sabedoria.

RESUMO

Os estudos da radioatividade ambiental, principalmente quando focados nas investigações dos Materiais Radioativos de Ocorrências Naturais, têm como destaques os radionuclídeos primordiais. Pois, eles são os que promovem visibilidade para determinação do padrão radioativo de áreas do planeta e permitem estabelecer critérios de controle ambiental contra possíveis contaminações e impactos negativos na exploração dos recursos naturais. Em grande parte, nas regiões influenciadas por níveis elevados de radionuclídeos naturais e outras sem histórico de anomalias radioativas, como forma de caracterizar essas áreas para que possam servir de controle radiométrico e radiológico, as pesquisas são conduzidas pelas análises radiométricas e radioquímicas. A Radioecologia, com sua multidisciplinaridade, tem adotado métodos investigativos que promovem a qualificação e quantificação de nuclídeos e radionuclídeos no ecossistema, suas relações com o meio ambiente e seres vivos, vias de transferência e mecanismos de transporte e deposição, buscando mitigar ou erradicar possíveis riscos para os seres vivos. Com o referido trabalho, objetivou-se a determinação do perfil radiométrico de solos com diferentes atividades humanas nas microrregiões do Sertão do Pajeú e do Sertão do Moxotó no Estado de Pernambuco-Brasil, no período de 03/2013 a 03/2015, com análise diferentes perfis, que vão desde a superfície até 60 cm de profundidade. Nos laboratórios do Departamento de Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco, para obtenção dos resultados empíricos foi utilizado um sistema de espectrometria gama de alta resolução que permitiu a caracterização do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nos perfis dos solos, assim como, quantificações em termos de atividades específicas. O método de análise utilizado foi do tipo não destrutivo, com investigação direta para o potássio, e indiretas para urânio, rádio e tório, assumindo a condição de equilíbrio radioativo secular. A metodologia proporcionou a obtenção de atividades específicas variando de 16,5 a 287,5 Bq/kg para o ^{238}U ; de 2,0 a 191,7 Bq/kg para o ^{226}Ra ; de 1,3 a 281,4 Bq/kg para o ^{232}Th e de 5,0 a 2.600,9 Bq/kg para o ^{40}K , cujo resultado global mostrou condição de áreas com baixa radiação ionizante para ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th , exceto para o ^{40}K , que em alguns pontos isolados, aproximadamente 21% das amostras investigadas, apresentou níveis elevados, porém, não representativos para o número de amostras investigadas por perfil. Os resultados servirão de ponto de partida para construção de um padrão radiométrico para o estado de Pernambuco, assim como possibilitará futuras investigações para determinação da origem do ^{40}K mensurado em níveis elevados para alguns pontos e perfis das áreas investigadas, o que tornará esse estudo um dos pioneiros em controle radiométrico de áreas com baixa radiação natural de fundo nessa região.

Pavras-chave: Ambiente. Instrumentação. Radiação. Radionuclídeos. Solo.

ABSTRACT

Environmental radioactivity studies, especially when focused on research about Radioactive Materials of Natural Occurrences, mainly the primordial radionuclides. For they are those that promote visibility for determination of the radioactive pattern of areas of the planet and allow to establish criteria of environmental control against possible contaminations and negative impacts on the exploitation of natural resources. In large part, in regions influenced by high levels of natural radionuclides and others with no history of radioactive anomalies, as a way of characterizing these areas so that they can serve as radiometric and radiological control, the researches are conducted by radiometric and radiochemical analyzes. Radioecology, with its multidisciplinary, has adopted investigative methods that promote the qualification and quantification of nuclides and radionuclides in the ecosystem, its relations with the environment and living beings, transfer routes and transport and deposition mechanisms, seeking to mitigate or eradicate possible risks to organisms. The objective of this study was to determine the radiometric profile of soils with different human activities in the micro regions of the Pajeú and Moxotó Sertão in the State of Pernambuco-Brazil, between 03/2013 and 03/2015, with different profiles, ranging from the surface up to 60 cm depth. In the laboratories of the Department of Nuclear Energy of the Federal University of Pernambuco, a high resolution gamma spectrometry system was used to characterize ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in soil profiles, as well as for determination in terms of specific activities. The method of analysis was of the non-destructive type, with direct measurement for potassium, and indirect one for uranium, radium and thorium, assuming the condition of radioactive secular equilibrium. The methodology allowed to obtain the values of specific activities, ranging from 16.5 to 287.5 Bq/kg for ^{238}U ; 2.0 to 191.7 Bq/kg for ^{226}Ra ; 1.3 to 281.4 Bq/kg for ^{232}Th and 5.0 Bq/kg for 2,600.9 Bq/kg for ^{40}K , whose overall result are typical of areas with low radiation level, taking into account the contribution of ^{238}U , ^{226}Ra and ^{232}Th . For ^{40}K , some isolated sites representing approximately 21% of the investigated samples, presented high levels, but not representative for the number of samples investigated by profile. The results will serve as a starting point for proposing a radiometric reference for the State of Pernambuco, as well as for future investigations to determine the origin of the ^{40}K measured at high levels for some points and profiles of the areas investigated, which will make this study one of the pioneers in radiometric control of areas with low natural background radiation in this region.

Key words: Environment. Instrumentation. Radiation. Radionuclides. Soil.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1 - Principais vias de transferência de radionuclídeos primordiais e os seus importantes descendentes no ecossistema terrestre.	21
Figura 2 - Distribuição da radioatividade ambiental em média global.	22
Figura 3 - Distribuição da radioatividade natural em média global.	23
Figura 4 - K, eTh e eU em rochas ígneas e relação com o teor de sílica.	35
Figura 5 - Localização do Estado de Pernambuco no Brasil e subdivisões estaduais.	40
Figura 6 - Mapa da Localização Geográfica da Microrregião do Sertão do Pajeú/PE.	41
Figura 7 - Mapa da Localização Geográfica da Microrregião do Sertão do Moxotó/PE.	42
Figura 8 - Mapa do Sertão de Pernambuco com a identificação dos pontos de coleta.	43
Figura 9 - Modelo de calibração em energia.	47
Figura 10 - Modelo de calibração em eficiência.	49
Figura 11 - Atividades do ^{238}U em cada perfil do solo por ponto amostral.	58
Figura 12 - Atividades do ^{226}Ra em cada perfil do solo por ponto amostral.	59
Figura 13 - Atividades do ^{232}Th em cada perfil do solo por ponto amostral.	59
Figura 14 - Atividades do ^{40}K em cada perfil do solo por ponto amostral.	60
Figura 15 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{238}U em solo.	62
Figura 16 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{226}Ra em solo.	63
Figura 17 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{232}Th em solo.	63
Figura 18 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{40}K em solo.	64
Figura 19 - Radionuclídeos acumulados por ponto de amostragem em solo.	66
Figura 20 - Caixa de dados para atividades acumuladas por ponto de amostragem em solo.	67

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - Séries naturais de decaimentos radioativos.	20
Tabela 2 – Taxas de dose de exposição à radiação gama terrestre em diversas localidades.	24
Tabela 3 - Região do Sertão do Estado de Pernambuco, tipos, usos e cobertura do solo.	44
Tabela 4 - Linhas gama de interesse.	50
Tabela 5 - Limites de detecção para HPGe-Be.....	52
Tabela 6 - Resultados detalhados das atividades radioativas nos diferentes perfis do solo.....	54
Tabela 7 - Estatística descritiva para os radionuclídeos estudados no solo.	61
Tabela 8 - Resultados das atividades acumuladas por ponto.	64
Tabela 9 - Teste de Kolmogorov-Smirnov para os radionuclídeos naturais em solo.	67
Tabela 10 - Matriz de correlação para o urânio.....	68
Tabela 11 - Matriz de correlação para o rádio.....	68
Tabela 12 - Matriz de correlação para o tório.	69
Tabela 13 - Matriz de correlação para o potássio.	69
Tabela 14 - Matriz de correlação por radionuclídeo e ponto de amostragem.	70
Tabela 15 - Atividade específica média do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em várias localidades.....	71

LISTA DE EQUAÇÕES

Equação 1 - Representa a energia a ser determinada (keV) em função da localização do fotopico no canal central (C)	47
Equação 2 - Expressa o cálculo das eficiências primárias	48
Equação 3 - Determina a eficiência em função das energias dos fotopicos.....	49
Equação 4 - Expressa a obtenção dos resultados das atividades específicas experimentais	51
Equação 5 - Expressa as atividades específicas por média ponderada	51
Equação 6 - Expressa o limite de detecção para energias utilizadas na quantificação do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K	52

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	14
2. OBJETIVOS	16
2.1 Geral	17
2.2 Específicos	17
3. REVISÃO DA LITERATURA	18
3.1 Radioatividade Ambiental	18
3.2 Radionuclídeos Naturais	25
3.2.1 Urânio	26
3.2.2 Rádio	28
3.2.3 Tório	31
3.2.4 Potássio	33
3.3 Distribuição de K, U e Th em Solos	35
3.4 Equilíbrio Radioativo	37
3.5 Espectrometria Gama	38
4. MATERIAIS E MÉTODOS	40
4.1 Área de Estudo	40
4.2 Procedimentos de coleta das amostras	43
4.3 Tratamento das Amostras	44
4.4 Padronização da metodologia radiométrica	45
4.4.1 Sistema de medidas e arranjo experimental.....	45
4.4.2 Modelo para calibração em energia	46
4.4.3 Modelo para cálculo das eficiências.....	48
4.4.4 Modelo para cálculo das atividades específicas experimentais	50
4.4.5 Limite de detecção	51
4.5 Método para tratamento estatístico	52

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO	54
6. CONCLUSÃO	72
7. RECOMENDAÇÕES.....	73
REFERÊNCIAS	74

1. INTRODUÇÃO

A radioatividade ambiental é constituída basicamente das fontes de radiação naturais e antropogênicas e, devido a essa composição, a exposição dos seres humanos à radiação ionizante proveniente das fontes naturais é uma característica permanente e inevitável da vida sobre a Terra, a qual é responsável por mais de 70%, quando comparadas a todas as possíveis fontes emissoras (UNSCEAR 2000), impactando fortemente nos estudos radioecológicos, que tratam do conhecimento, distribuição, dinâmica, vias de transferência e impactos decorrentes das fontes de radioatividade no meio ambiente e suas relações com os seres vivos.

As atividades antrópicas e uso dos solos podem promover aumento nas concentrações dos Materiais Radioativos de Ocorrências Naturais (NORM), principalmente na superfície do solo, alterando a radiação de fundo dos ambientes, classificando-os dentro da categoria de Materiais Radioativos de Ocorrências Naturais Tecnicamente Aumentados (TENORM), cujos níveis podem ser centenas e até milhares de vezes superiores aos valores médios globais (SANTOS JÚNIOR, 2009).

Os solos são considerados as principais fontes de radiação natural, tendo em vista que são originários de rochas, que podem conter níveis anormais de minerais radioativos. A radioatividade desses solos depende essencialmente das condições geográficas e geológicas de cada região (VASCONCELOS, 2010), onde esses elementos radioativos contribuem significativamente para aumento da dose de radiação ambiental nos seres humanos, fazendo-se necessário priorizar estudos radioecológicos na tentativa de definir modelos que expliquem possibilidades estocásticas atribuídas às irradiações, inalações e/ou ingestões desses radionuclídeos (VEIGA et al., 2006), cujas características e propriedades físicas e químicas, justificam a necessidade de constante monitoração do ecossistema em vista de sua proteção e do ser humano.

Segundo o Comitê Científico das Nações Unidas para os Efeitos das Radiações Atômicas, do inglês UNSCEAR - United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation (UNSCEAR, 1993), a média anual de dose proveniente de fontes de radiação natural é de 2,4 mSv, que é calculada com base nas atividades radiométricas dos solos e rochas (superfície terrestre) para compartimentos ambientais e biológicos diferenciados. Valores superiores ao citado podem ser considerados anômalos do ponto de vista de proteção radiológica ambiental (GHIASSI-NEJAD et al., 2002), a depender do tipo de radionuclídeo emissor e forma de transferência.

Para se avaliar o nível da radioatividade natural e sua relação com a saúde das populações se faz necessário a determinação das concentrações dos radionuclídeos naturais, precursores e descendentes das séries do ^{238}U e do ^{232}Th , assim como, o ^{40}K , o que permite estabelecer critérios de uso dos recursos naturais e suas diferentes aplicações para o avanço tecnológico e humano.

Poucas regiões do Brasil foram estudadas detalhadamente acerca de monitoramento radiométrico, por exemplo, podendo-se citar apenas Guarapari na região costeira do Estado do Espírito Santo (MALANCA et al, 1995; FUJINAMI et al., 2000) e o Morro do Ferro no Estado de Minas Gerais com uma análise radiométrica mais consistente (PASCHOA, 2000). Na região do Nordeste do Brasil, são mais escassos, ainda, os estudos radioecológicos e as informações publicadas são, na maioria, oriundas de estudos com diferentes protocolos de amostragem e análises laboratoriais. Contudo, pesquisas de monitoração aerocintilométricas e geológicas desenvolvidas primariamente no período entre 1977 a 1982 (SANTOS JÚNIOR, 2005), detectaram anomalias de urânio em algumas áreas do nordeste brasileiro, destacando-se o distrito Uranífero de Lagoa Real (Bahia), em fase de produção, e o de Itataia (Ceará) (SILVA, 2014a). Também pode ser citado o depósito de Espinharas na Paraíba, mas com reservas cubadas bastante inferiores aos dois primeiros (DNPM, 2009), bem como o estudo realizado por Souza et al. (2012), desenvolvido em afloramentos rochosos no município de Pocinhos - PB.

O estado de Pernambuco, apesar de estudos realizados nos municípios de Pedra e Venturosa, onde ocorrem anomalias pontuais de urânio (SANTOS JÚNIOR et al., 2010), além de outros poucos estudos desenvolvidos na área da fosforita pernambucana que relatam P_2O_5 em rochas fosfáticas de origem sedimentar, pode variar desde valores menores que 10% em regiões próximas ao mar, mas que vai crescendo lentamente na direção oeste, até alcançar valores maiores que 30% em uma região denominada “fosfato rico”, onde foi explorada para a produção de fertilizantes (AMARAL, 1994; REZENDE, 1994; AMARAL, et al., 2002; SILVA, et al., 2003; AMARAL, et al., 2005; MELO, 2008; MORAIS, 2013). Portanto, nota-se que não existem evidências do monitoramento de outras áreas do estado, importantes para descrever a situação da radiação de fundo desses ambientes, cujos resultados podem servir de base para determinação de valores de referência, inclusive no banco de dados global.

O trabalho em questão tratou da realização de estudos radiométricos em solos das microrregiões do Moxotó e Pajeú de Pernambuco com análises de diferentes perfis, como ferramenta para descrever a correlação entre radionuclídeos e perfis de solos com diferentes

atividades antrópicas, assim como, dinâmica do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K e possíveis impactos ambientais.

As análises foram realizadas no Laboratório de Instrumentação Nuclear II (LIN-II) do Departamento de Energia Nuclear da UFPE utilizando-se de método não destrutivo de amostras, fazendo uso de um sistema de espectrometria gama de alta resolução do tipo HPGe-Be, uma forma de monitoração e avaliação radioecológica, que pode ser associada ao Programa de Monitoração Ambiental (PMA) como ferramenta essencial e que possibilitará descrever a condição dos níveis de radioatividade natural, uma proposta que permitirá maior proteção do meio ambiente e dos seres vivos.

2. OBJETIVOS

2.1 Geral

O objetivo geral desse trabalho foi à realização do mapeamento radiométrico de parte das microrregiões do Sertão do Moxotó e do Pajeú no estado de Pernambuco, fazendo uso de análises por espectrometria gama de alta resolução em amostras de diferentes perfis do solo para determinação das atividades específicas dos radionuclídeos primordiais e descendentes.

2.2 Específicos

Os objetivos específicos são os seguintes:

- a) Coletar amostras de solo em diferentes perfis.
- b) Preparar as amostras para determinação dos radionuclídeos naturais por método de análise não destrutiva.
- c) Elaborar equações semiempíricas para determinação das eficiências e atividades radiométricas dos radionuclídeos ambientais e descendentes.
- d) Realizar análise radiométrica por espectrometria gama para investigação dos níveis do ^{238}U , do ^{226}Ra , do ^{232}Th e do ^{40}K nos diferentes perfis do solo.
- e) Determinar as correlações dos radionuclídeos naturais nos diferentes perfis dos solos e entre eles.
- f) Avaliar pelo uso de ferramentas estatísticas o comportamento dos radionuclídeos presentes nos solos.
- g) Estimar um valor para representar a condição radiométrica das microrregiões do Sertão do Moxotó e do Pajeú em Pernambuco.
- h) Contribuir para despertar a necessidade de inclusão das análises da radioatividade natural na avaliação do Programa de Monitoração Ambiental.
- i) Sugerir valores de referência para os radionuclídeos naturais qualificados e quantificados nos solos com diferentes atividades antrópicas das áreas investigadas.

3. REVISÃO DA LITERATURA

3.1 Radioatividade Ambiental

As radiações ionizantes existem na Terra desde a sua origem, sendo essas, classificadas como natural. No início da formação do planeta, as taxas de exposição a estas radiações eram incompatíveis com a vida, mas com o passar do tempo, os radionuclídeos, responsáveis pelas radiações ionizantes, foram evoluindo para configurações cada vez mais estáveis, através da liberação do excesso de energia armazenada nos seus núcleos, sendo que a maior parte dessa radiação recebida pelo ser humano provém das fontes naturais que são aquelas que não foram originadas por ações antropogênicas, cujas exposições são classificadas em interna e externa ao ambiente e ao ser vivo (HUHN, 2014).

A exposição interna ao organismo é responsável por aproximadamente 2/3 da dose equivalente efetiva recebida pelo homem decorrente das fontes radioativas naturais, em consequência da inalação do ar e/ou poeira, principalmente pela presença do radônio e seus descendentes, e da ingestão de alimentos e da água (SILVA, 2004).

Quanto à exposição externa, deve-se aos raios cósmicos e radionuclídeos provenientes do espaço (radiação cósmica) e aos elementos radioativos naturais existentes na crosta terrestre, radiação terrestre ou radionuclídeos primordiais (SILVA, 2004).

Os radionuclídeos cósmicos são produzidos por bombardeamento de núclídeos estáveis por raios cósmicos, cuja interação, consiste nos elétrons, prótons e núcleos complexos de alta energia, que podem ser produzidos em uma diversidade de ambientes astronômicos, sendo que muitas dessas partículas acabam alcançando a atmosfera do planeta Terra, sendo freadas por colisões com outras partículas, radiando não só para a superfície terrestre, como são capazes de atravessar muitos metros de solo e rochas, podendo até facilmente atravessar vários centímetros de chumbo (IFUSP, 2017). A exposição às radiações cósmica aumenta com a altitude porque a camada de ar que atua como proteção diminui. Portanto, uma pessoa ao escalar uma alta montanha ou viajar em aeronaves, recebe doses maiores de radiação cósmica, quando comparadas com os indivíduos que estão ao nível do mar (LIMA, 2007; IFUSP, 2017).

Os radionuclídeos primordiais foram originados durante o processo de formação do planeta. No entanto, nos bilhões de anos em que a Terra existe, os radionuclídeos de meia-vida

curta desapareceram. Os radionuclídeos hoje existentes são aqueles cujas meias-vidas são comparáveis à idade da Terra, como o ^{40}K , o ^{87}Rb e as três séries de elementos radioativos que têm sua origem nos precursores ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th . O decaimento do ^{87}Rb e do ^{40}K termina em um isótopo estável de estrôncio e cálcio, respectivamente. No caso das séries dos elementos radioativos naturais, elas são iniciadas a partir de um isótopo do urânio ou do tório, terminando em isótopos estáveis do chumbo, cujas transmutações desses núcleos, ocorrem por emissões de partículas alfa e beta, cujos precursores apresentam meias-vidas da ordem de bilhões de anos (EISENBUD; GESELL, 1997; VASCONCELOS, 2010). Convém destacar que, a contribuição da série do decaimento do ^{235}U na dose total é muito baixa. Dessa maneira, essa série não é levada em consideração na determinação de parâmetros radiométricos (GONZÁLEZ-CHORNET; GONZÁLES-LABAJO, 2004; VASCONCELOS, 2010).

As quantidades de radiações ionizantes às quais os seres humanos estão expostos ao longo de sua vida, sejam naturais ou artificiais, são designadas de radiação de fundo ou *background*, cujos níveis podem mudar significativamente de um local para outro, pois dependem da formação geológica de cada área do planeta e do seu posicionamento geográfico. As atividades antrópicas podem alterar a concentração de materiais radioativos de ocorrência natural (NORM) ou introduzindo radionuclídeos artificiais em determinados ambientes. Uma dessas ações é a aplicação de fertilizantes na agricultura (UNSCEAR, 2000; GARCÊZ, 2016).

Sendo assim, pode-se observar que a radioatividade ambiental está diretamente associada à exposição aos radionuclídeos naturais e seus produtos de decaimentos, cujas séries radioativas são apresentadas na Tabela 1 (TZORTZIS; TSERTOS, 2004; ANJOS et al., 2005; SANTOS JÚNIOR, 2009).

Como consequência dos radionuclídeos estarem intrinsecamente incorporados aos solos, somente uma fração é removida em curto prazo por processos geoquímicos, como migração vertical ou absorção pelas raízes das plantas dependendo da forma química em que o radionuclídeo se encontra. Assim, para estimar um possível risco de exposição à radiação desses radionuclídeos em longo prazo, não somente a sua atividade total no solo, mas também a sua geoquímica, a biodisponibilidade para os processos ecológicos e os fatores que estão influenciando nessa distribuição precisam ser conhecidos (BUNZL et al., 1995; BUTLER et al., 1999; DAVIS et al., 1999).

Tabela 1 - Séries naturais de decaimentos radioativos.

Urânio-238			Urânio-235			Tório-232		
Isótopo	E	T _{1/2}	Isótopo	E	T _{1/2}	Isótopo	E	T _{1/2}
²³⁸ U	α	4,5x10 ⁹ a	²³⁵ U	α	7,0x10 ⁸ a	²³² Th	α	1,4x10 ¹⁰ a
²³⁴ Th	β ⁻	24,1 d	²³¹ Th	β ⁻	25,6 h	²²⁸ Ra	β ⁻	5,7 a
²³⁴ Pa	β ⁻	1,2 min	²³¹ Pa	α	3,3x10 ⁴ a	²²⁸ Ac	β ⁻	6,13 h
²³⁴ U	α	8,0x10 ⁴ a	²²⁷ Ac	β ⁻	22 a	²²⁸ Th	α	1,9 a
²³⁰ Th	α	1.600 a	²²⁷ Th	α	18,7 d	²²⁴ Ra	α	3,64 d
²²⁶ Ra	α	3,8 d	²²³ Ra	α	11,4 d	²²⁰ Rn	α	55,6 s
²²² Rn	α	3,05 min	²¹⁹ Rn	α	3,9 s	²¹⁶ Po	α	0,15 s
²¹⁸ Po	α	26,8 min	²¹⁵ Po	α	1,8x10 ⁻³ s	²¹² Pb	β ⁻	10,6 h
²¹⁴ Pb	β ⁻	19,8 min	²¹¹ Pb	β ⁻	36,1 min	²¹² Bi	α (33,7%)	60,6 min
²¹⁴ Bi	β ⁻	1,6x10 ⁻⁴ s	²¹¹ Bi	α	2,15 min		β ⁻ (66,3%)	
²¹⁴ Pb	α	22 a	²⁰⁷ Tl	β ⁻	4,8 min	²⁰⁸ Tl	α	3,1 min
²¹⁰ Bi	β ⁻	5,0 d	²⁰⁷ Pb	Estável		²¹² Po	α	3,0x10 ⁻⁷ s
²¹⁰ Po	α	138,4 d				²⁰⁸ Pb	Estável	
²⁰⁶ Pb	Estável							

a = ano; d = dia; h = hora; min = minuto; s = segundo; E = emissão; T_{1/2} = meia-vida.

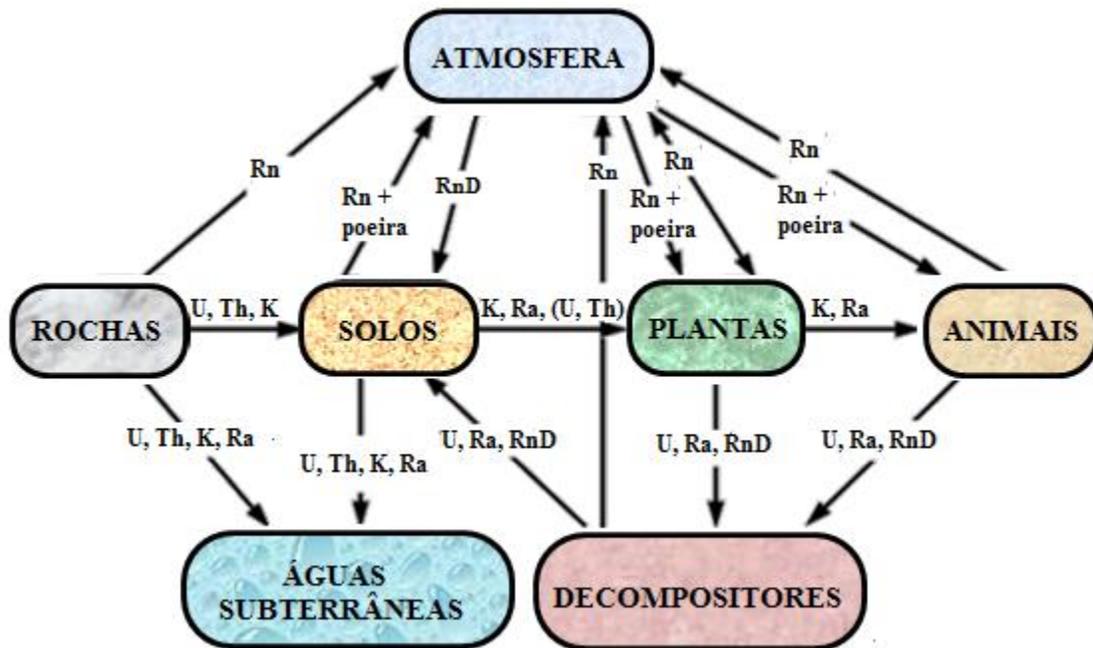
Fonte: EGGERBERT-SEELMANN et al. (1974) apud SANTOS JÚNIOR, 2009.

Os radionuclídeos presentes no meio ambiente se incorporam ao homem por intermédio de várias vias de transferência, esquematizadas na Figura 1. Nela se observa que essas vias podem ser: as plantas, água, ar, animais terrestres e aquáticos e seus derivados (AMARAL, 1994).

A introdução de materiais radioativos, decorrente de atividades humanas, assim como o crescente desenvolvimento da área nuclear e as suas aplicações nos diversos setores da sociedade, tem aumentado a preocupação com o destino dos radionuclídeos liberados no meio ambiente em decorrência de sua expansão, podendo eventualmente contribuir elevando os níveis de radioatividade e aumentando a dose de radiação dos indivíduos expostos, atingindo valores que podem ser considerados significativos. É oportuno saber que uma pessoa recebe de ⁴⁰K, em média, 0,180 mSv/a incorporado juntamente com o potássio não radioativo, que é um elemento essencial para o seu organismo. Entretanto, a maior parte da dose de radiação recebida pela população mundial provém dos radionuclídeos das séries naturais do ²³⁸U e ²³²Th, originada a partir dos

decaimentos, transmutações e a formação de outros radionuclídeos que são os mais importantes para os radioecologistas (MAZZILLI et al., 2002; TURNER, 2007).

Figura 1 - Principais vias de transferência de radionuclídeos primordiais e os seus importantes descendentes no ecossistema terrestre.



Fonte: MAZZILLI et al., 2011 Adaptada.

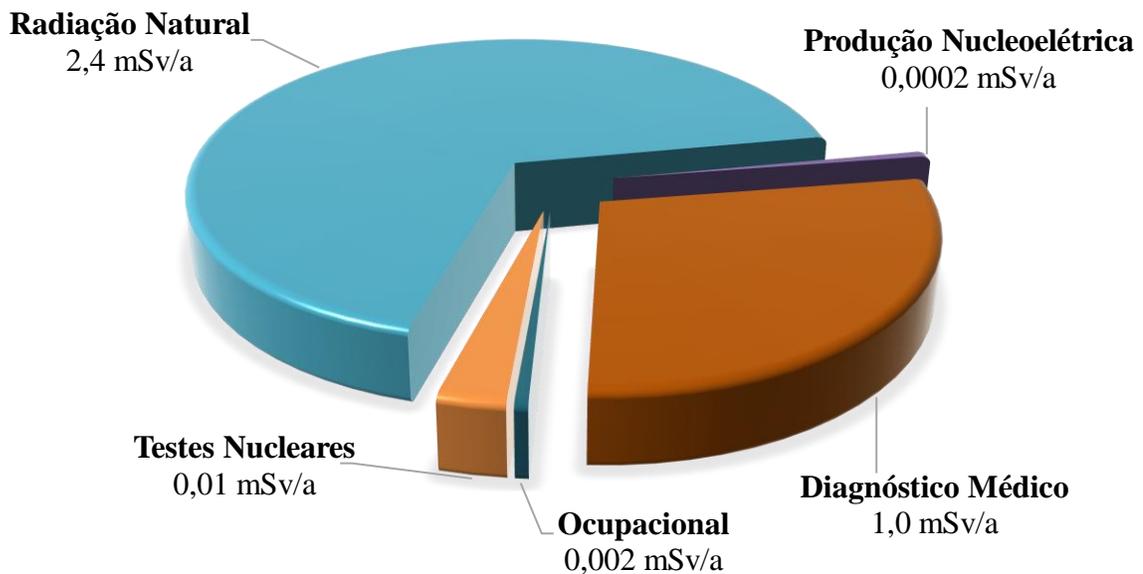
Na Figura 2, tem-se a relação de distribuição geral da dose efetiva para os radionuclídeos presentes no ambiente.

A UNSCEAR (2000) relatou que em média a população mundial recebe uma dose equivalente da ordem de 2,4 mSv/a, que é a mesma divulgada pela UNSCEAR (1994). Esse valor não deve ser tomado como um dado exato, uma vez que os valores médios mencionados estão baseados em dados não representativos da população mundial como um todo (TRIOLA, 1999; SILVA, 2014a).

Segundo Silva (2014a), a Radioecologia é uma ciência que tem por objetivo detectar a presença de radionuclídeos no ambiente, identificar as suas origens e compreender os processos de transferência e de concentração nos vários compartimentos dos ecossistemas. Portanto, objetiva o entendimento da influência dos radionuclídeos naturais e antrópicos sobre o ambiente e os

organismos vivos, proporcionando o desenvolvimento de modelos que explicam o acúmulo, migração, incorporação e disseminação desses radionuclídeos na biosfera.

Figura 2 - Distribuição da radioatividade ambiental em média global.



Fonte: UNSCEAR (2000).

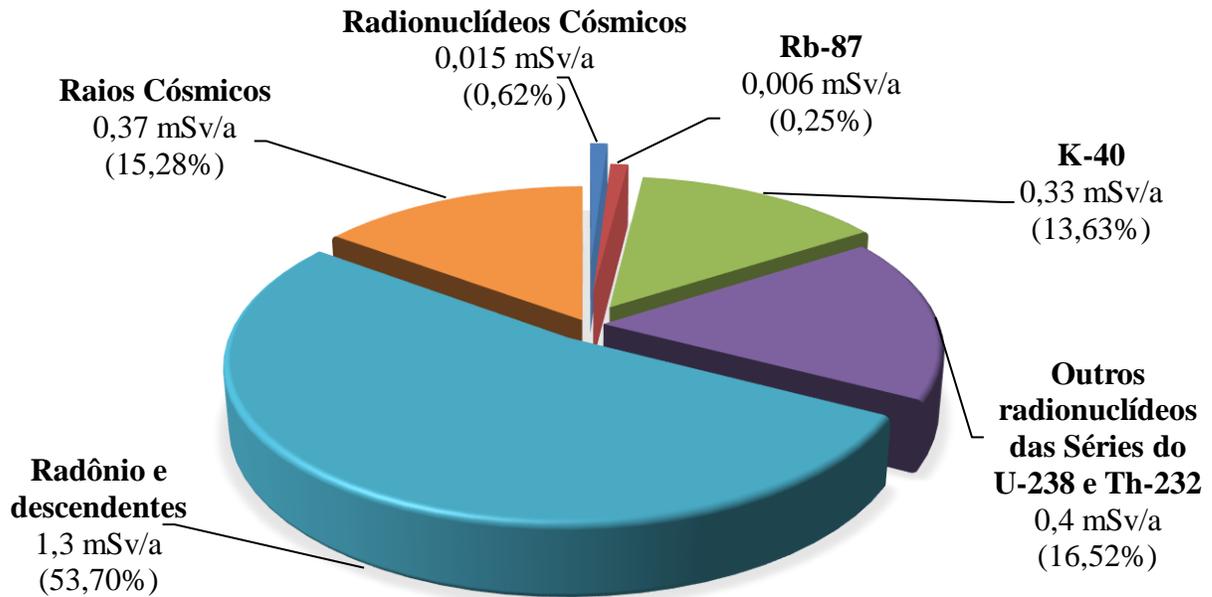
Amaral (1994), descreveu que as regiões que apresentam altas radiações de fundo têm despertado grande interesse da comunidade acadêmica nas áreas de dosimetria ambiental e instrumentação nuclear, no sentido de avaliar as atividades de radionuclídeos naturais e sua contribuição na dose recebida pela população.

Estudos realizados mostram que aproximadamente 95% da população mundial vive em áreas onde a taxa de dose efetiva média proveniente de fontes naturais oscila entre 0,3 e 0,6 mSv/a (MAZZILLI et al., 2011).

Aproximadamente 3% da população recebem doses da ordem de 1 mSv/a e 1,5% acima de 1,4 mSv/a, existindo lugares em que os níveis de radiação terrestre são muito mais elevados. Vale salientar que a taxa de dose efetiva máxima permitida para indivíduos do público é de 1 mSv/a (AQUINO; AQUINO, 2012).

A distribuição da dose efetiva anual média na população mundial, decorrente dos radionuclídeos naturais é observada nos dados contidos na Figura 3.

Figura 3 - Distribuição da radioatividade natural em média global.



Fonte: UNSCEAR (2000).

Na Figura 3 é priorizada a importância da monitoração dos radionuclídeos primordiais, que contribuem com aproximadamente 84% da exposição à radiação natural, sendo o restante decorrente dos raios cósmicos e dos radionuclídeos cosmogênicos. Neste aspecto, destaca-se a avaliação do radônio para exposição interna ao organismo vivo, principalmente pela inalação, que em média, pode contribuir com 53% da exposição natural (MAZZILLI et al., 2011).

Na Tabela 2, apresentam-se diferentes taxas de dose de exposição à radioatividade natural para algumas localidades do planeta Terra, onde os níveis podem apresentar grandes dispersões em função dos aspectos físicos, geográficos e geológicos já relatados. Normalmente, os altos níveis de radiação estão associados à presença de maiores concentrações de minerais radioativos presentes nas rochas ígneas, e os baixos níveis às rochas sedimentares. Entretanto, outros tipos de rochas podem conter níveis elevados de radionuclídeos naturais (UNSCEAR, 2000; SANTOS JÚNIOR, 2009).

Outro fator importante que também pode aumentar de forma considerável a exposição do homem à radiação natural é a forma como se vive: a utilização de determinados materiais de construção civil, o isolamento térmico dos ambientes, a altitude, bem como as viagens de avião e hábitos de vida da população (MAZZILLI et al., 2002).

Tabela 2 – Taxas de dose de exposição à radiação gama terrestre em diversas localidades.

Localização	Taxa de dose (mSv/a)
Clallam Bay, Washington	0,24
“Típica” para EUA	0,60
Denver, Colorado	1,14
Localidades atipicamente altas em Kerala, Índia	16,00
Floresta Negra, Alemanha	18,00
Cidade Central, Colorado	22,00
Guarapari, Brasil	170,00
União Soviética	700,00

Fonte: EISENBUD (1987) – Adaptada.

No Brasil, algumas áreas apresentam altos níveis de radioatividade natural. Entre elas, além das praias com areias monazíticas, em Guarapari, no Espírito Santo, citada na Tabela 2, também, pode-se destacar a região de minas de urânio e tório do Planalto de Poços de Caldas em Minas Gerais, onde os níveis de radiação natural atingem valores dezenas de vezes superiores aos normais (EISENBUD; GESELL, 1997).

No Nordeste do Brasil, rochas fosfáticas localizadas na faixa costeira, que se inicia em Pernambuco (sul de Olinda) e termina no extremo norte da Paraíba, possuem concentrações de urânio variando de 30 a 530 mg/kg (150 a 300 mg/kg de U_3O_8) e de tório variando de 1 a 30 mg/kg (0,0001 a 0,0005%) (NUCLEBRAS, 1984; AMARAL, 1987; SILVA, 2014a).

Outros estudos realizados na região nordeste, especificamente no estado da Paraíba evidenciaram a existência de urânio em quantidade não significativa para extração no município de Pocinhos, caracterizada em blocos rochosos aflorantes e pontuais (NUCLEBRAS, 1984; COSTA, 2014).

Em São Mamede, também na Paraíba, foram localizados pontos anômalos em urânio e tório em afloramentos rochosos de diferentes áreas no município. Porém, esse estudo priorizou a determinação da taxa de dose efetiva ambiental no ar (CHARFUELÁN, 2014).

Araújo (2014) realizou estudos na matéria prima de olarias utilizada na produção de telhas e tijolos nos municípios de São José Sabugí e Santa Luzia, na Paraíba, assim como, Santana do Seridó e Parelhas, no Rio Grande do Norte, determinando para alguns locais, níveis diferenciados

para o rádio equivalente, caracterizando pelos valores de algumas dessas atividades específicas, níveis de radioatividade natural superior à média global (ARAÚJO, 2014).

Bezerra (2014), munido de parâmetros investigativos de trabalhos realizados na jazida de urânio de Espinharas - PB, assim como, áreas circunvizinhas, foi realizada a monitoração dos ambientes internos de algumas residências, onde se utilizou a dosimetria termoluminescente, calculando a dose “indoor”, mostrou que algumas dessas residências apresentaram valores elevados para radioatividade ambiental, decorrentes do processo natural de formação dos minerais das rochas que contêm as anomalias de urânio ou até mesmo, o material utilizado nas construções civis.

No Estado de Pernambuco, estudos recentes realizados nas regiões do agreste semiárido e no litoral desse, identificaram afloramentos anômalos em urânio e tório, precisamente no agreste semiárido, em amostras de rochas cálcio-silicáticas anfíbolíticas, cujas concentrações de urânio foram da ordem de 9.100 mg/kg com 0,42% de U_3O_8 , que é 3.250 vezes superior ao teor médio global do urânio que é de 2,8 mg/kg (SANTOS JÚNIOR, 2009). No litoral, as anomalias estão associadas à presença de urânio nas rochas fosfáticas (AMARAL et al., 2005).

Em um contexto geral, a maioria das pesquisas realizadas pelo Grupo de Radioecologia do Departamento de Energia Nuclear foi concentrada no Estado da Paraíba, justificada pela presença do depósito natural de urânio com tório associado, negligenciando investigações no Estado de Pernambuco. Essa situação potencializa a necessidade da realização de pesquisas em Pernambuco, justificada pela falta de estudos e pelas ocorrências uraníferas isoladas já identificadas (SANTOS JÚNIOR, 2009), ou seja, essa região carece de uma alternativa que descreva o seu perfil da radioatividade natural.

3.2 Radionuclídeos Naturais

Os radionuclídeos naturais considerados no referido trabalho foram ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e o ^{40}K , os quais, conforme relatos anteriores são mais representativos para exposição a radioatividade ambiental, destacando que mais da metade dessa exposição decorre do radônio e seus descendentes. Neste aspecto, serão apresentados a seguir, priorizando as suas principais propriedades físicas, químicas e radioativas no contexto ambiental.

3.2.1 Urânio

O urânio é o metal radioativo mais denso que ocorre na natureza. Sua densidade é igual a $17,3 \text{ g/cm}^3$ que é 80% maior que a do chumbo, é menos duro que o aço, dúctil, prateado e maleável, ocorrendo em diversas formas em vários ambientes geológicos, sempre em combinação com o oxigênio, sendo que os óxidos formados mais importantes são: a uraninita (UO_2), uranita (UO_3) e a pechblenda (U_3O_8). As rochas graníticas e fosfáticas possuem concentrações significativas de urânio. Ele também é encontrado na linhita (carvão fóssil, estágio intermediário entre a turfa e o carvão betuminoso) e em areias com monazita constituída por fosfato de cério, lantânio, praseodímio, neodímio e óxido de tório (ARGENTIÈRE, 1954; OLIVEIRA, 2007; CARDOSO, 2012; INB, 2017).

O urânio possui três isótopos naturais: ^{234}U , ^{235}U e ^{238}U , destacando que o ^{235}U é um radioisótopo físsil que forma a base da produção de energia nuclear, e por isso, extremamente estratégico do ponto de vista tecnológico. Verifica-se que a sua contribuição como fonte natural de radiação é pequena (0,71%) quando comparada a abundância natural do ^{238}U (99,28%). Entretanto, mesmo que a atividade específica apresentada pelo ^{235}U seja aproximadamente sete vezes maior do que a do ^{238}U , a sua baixa fração molar, faz com que os radionuclídeos pertencentes a essa série não apresentem relevância radioecológica (BONOTTO, 2008; SILVA, 2014a).

Devido ao decaimento radioativo, a quantidade de urânio em uma amostra diminui gradativamente com o tempo, mas o ^{238}U tem uma meia-vida extremamente longa ($4,47 \times 10^9$ anos). Entretanto, sua meia-vida biológica para os ossos é de 20 e 5.000 dias. Considerando outros dois compartimentos, rins e outros tecidos, é de 6 e 1.500 dias, respectivamente. A sua atividade específica é de 12 MBq/kg, emissor alfa com energias de 4,20 MeV (79%) e de 4,15 MeV (21%) (FIRESTONE et al., 1996; SANTOS JÚNIOR, 2009).

Os minerais que contêm urânio são classificados como primários e secundários. Os primários são aqueles que não sofreram alterações desde sua formação, enquanto que os secundários são formados a partir dos primários devido ao intemperismo. As concentrações médias do urânio presentes nos principais minerais são: (a) uraninita (88%) que é um uranato complexo de uranila e chumbo, podendo conter lantânio, tório, ítrio; (b) pechblenda (60 - 70%), um uranato associado a pegmatitos/granitos; (c) coffinita (74%) é uma forma de silicato; (d) carnonita (44 - 52,8%), também conhecida por uranovanadato de potássio hidratado; (e) autunita (54,5%),

quimicamente chamada de uranofosfato de cálcio hidratado; (f) torbenita (52,8%), chamada de uranofosfato de cobre hidratado e (g) thucholita (1,8%), que é um humato de urânio (GILL, 1996; LIMA, 1996; SANTOS JÚNIOR, 2009; SILVA, 2014b).

Esses minerais aparecem geralmente nas rochas eruptivas e nos pegmatitos associados ao tungstênio. Suas maiores concentrações estão, porém, nas rochas sedimentares, principalmente devida a cadeia geoquímica do urânio, que inicia e finda com uma rocha ácida, graníticas, contendo concentrações acima de 8 mg/kg e nas rochas fosfáticas, o teor médio deste elemento pode chegar a 120 mg/kg, podendo destacar no nordeste brasileiro Caetité na Bahia e Itataia no Ceará, onde esse teor pode chegar a 1.500 mg/kg (DNPM, 2009). As rochas básicas (basaltos) apresentam percentuais inferiores a 1,0 mg/kg de urânio.

A crosta terrestre normalmente apresenta uma variação de urânio no solo entre 0,3 mg/kg e 11,7 mg/kg, isto equivale a uma variação percentual de 0,00027 até 0,0004% e a sua atividade específica média está entre 25 e 35 Bq/kg, aproximadamente (GUERRA, 1990; UNSCEAR, 2000; PRADO, 2007; SANTOS JÚNIOR, 2009).

O urânio lixiviado de qualquer rocha sob condições oxidantes sofre precipitação num ambiente redutor, conforme se verifica em arenitos ricos em matéria orgânica ou em sulfetos de ferro. Os teores de urânio nesses ambientes geralmente variam entre 0,05% e 0,2%. Em sedimentos de granulação mais fina, como folhelhos formados em bacias anóxicas, o urânio concentra-se principalmente na matéria orgânica, atingindo níveis de 30 a 60 mg/kg (PAIVA, 2008).

Em virtude da solubilidade dos minerais de urânio, esse elemento pode ser transportado por água superficial ou subterrânea como íons uranila, sob a forma de vários complexos solúveis com os ânions comumente dissolvidos até ambientes redutores, onde se precipita na forma de pechblenda ou coffinita. Em condições ácidas, os principais complexos de uranila são formados com o fosfato e em condições alcalinas, são formados com o carbonato (KRAUSKOPF, 1972; LANGMUIR, 1978). Os teores de urânio nas águas subterrâneas, assim como, nas rochas, variam bastante, dependendo da litologia e/ou proximidade a jazidas desse elemento, considerando-se muitas vezes como anômalos os valores acima de 4 µg/L (PAIVA, 2008).

Devido sua instabilidade química, o urânio metálico é um forte agente redutor e por ter uma forte tendência em se oxidar, forma compostos com muitos elementos químicos. São conhecidos quatro estados de oxidação: +3, +4, +5 e +6, apresentando-se em seu estado mais estável oxidação +6, no qual existe o íon uranilo (UO_2)²⁺, também conhecido como uranila que é responsável pela

coloração típica amarelo-esverdeada fluorescente. Ele também se separa de soluções alcalinas na forma de diuranato (U_2O_7)²⁻ ou uranato (UO_4)²⁻ (OLIVEIRA JÚNIOR et al., 2005; SANTOS JÚNIOR, 2009; SILVA, 2014a).

Os compostos de urânio são substâncias não degradáveis, que é a propriedade intrínseca mais importante na determinação do potencial de dano ao meio ambiente. Consequentemente, eles poderão causar efeitos crônicos à biota e aos seres humanos. Ressaltando que, embora considerado pouco radioativo, o urânio é um metal pesado com alto potencial quimiotóxico. Como todos os radioisótopos do urânio emitem partículas alfa, que são incapazes de penetrar até as camadas superficiais da pele humana. Mas, elevadas concentrações desses radioisótopos e de seus descendentes em alimentos, água ou ar podem levar a irradiação interna e/ou toxicidade química. Supõe-se que o urânio só ofereça risco à saúde humana se for absorvido por inalação e impactando fortemente na saúde da população quando absorvido pela ingestão ou penetre os tecidos (OLIVEIRA, 2007; AZEVEDO; CHASIN, 2004; PRADO, 2007).

A distribuição do urânio, quando ingerido ou inalado, embora se irradie por todo o organismo, apresenta concentrações maiores nos ossos. No primeiro caso, vai rapidamente para a corrente sanguínea, devido as suas características físico-químicas, apresentando absorção pelo sistema gastrointestinal de cerca de 1,4%. Em um homem de referência com aproximadamente 70 kg, a quantidade de 10 a 30 mg diária de urânio solúvel, é suficiente para produzir toxicidade nos rins (AMARAL, 1994; AQUINO, 2006).

3.2.2 Rádío

O rádio é um elemento químico de cor branca prateada, o mais denso do grupo dos metais alcalinos terrosos e apresenta alta mobilidade no ambiente. Dependendo das características do fluido e da fase sólida, pode ser facilmente removido da fase sólida para fase aquosa, com apenas o estado de oxidação +2 conhecido. Nos solos sua atividade específica varia entre 17 e 60 Bq/kg (UNSCEAR, 2000; PAIVA, 2008; CARDOSO et al., 2009; CHARFUELÁN, 2014).

Os isótopos mais importantes do rádio são: o ²²⁶Ra, devido à sua meia-vida longa, em seu decaimento produz o ²²²Rn e abundância natural do seu precursor o ²³⁸U, e o ²²⁸Ra que possui presença marcante nos solos brasileiros devido à grande ocorrência do seu precursor o ²³²Th (MOLINARI, 1990; OLIVEIRA, 2008).

O isótopo ^{226}Ra é originado pelo decaimento radioativo do ^{230}Th , pertencente à série do ^{238}U , possui uma meia-vida física de 1.622 anos, que é a mais longa dentre seus isótopos, forma o ^{222}Rn , com meia-vida física de 3,82 dias. Possui uma atividade específica média estimada em 26 Bq/kg nas superfícies dos solos de baixa radioatividade e apresenta similaridade química com o cálcio. Decai por emissões alfa de 4,78 MeV (94,5%) e 4,61 MeV (5,5%), além da emissão gama de 186 keV (3,5%).

O isótopo ^{228}Ra , devido ao comportamento do tório que é extremamente insolúvel, apresenta suas concentrações controladas de acordo com a distribuição de seu elemento precursor (^{232}Th), possui uma meia-vida de 5,76 anos e é um emissor beta puro com energia de 55 keV. Essa emissão ocasiona a formação do ^{228}Ac que apresenta um tempo de meia-vida de 6,13 horas, emissor gama com energias de 911, 969 e 338 keV, que normalmente são utilizadas para determinação indireta do ^{228}Ra por espectrometria gama (EISENBUD; GESELL, 1997; UNSCEAR, 2000; SANTOS JÚNIOR, 2009; MORAIS, 2013; COSTA, 2014).

Do início do século XX até o ano de 1950, o rádio foi muito utilizado na fabricação de tintas luminescentes para marcadores de relógios e manômetros na forma do sal cloreto de rádio. Essa luminescência é devido a sua extrema radioatividade que se estende de 900 a 2.000 vezes superior a radioatividade do urânio. Na medicina, foi utilizado na forma de agulhas para irradiar tumores e na produção de radônio para o tratamento do câncer, porém está em desuso já que existem tratamentos mais seguros e menos dispendiosos.

Atualmente, a utilização do rádio é muito pequena devido à sua extrema radiotoxicidade, dificilmente está disponível para comercialização, pois mesmo em quantidades ínfimas ainda é de alto risco (CHARFUELÁN, 2014). Esse radionuclídeo natural, raramente aparece sozinho na natureza. Como ele é gerado pelo decaimento do ^{238}U e/ou do ^{232}Th , todos os minerais e rochas que contêm isótopos naturais de urânio e tório apresentam quantidades mensuráveis de rádio, estando presente também na água do mar em quantidades pequenas.

Quando exposto diretamente ao ar atmosférico, reage com o nitrogênio formando uma película escura de nitrito de rádio Ra_3N_2 .

Na crosta terrestre, sua concentração média é estimada em 0,9 ng/kg e nas águas marinhas em 89 pg/L. Ressaltando que as concentrações de ^{226}Ra em águas minerais podem atingir mais de 3,7 Bq/L, valor que é muitas vezes maior que aqueles reportados normalmente na água de

abastecimento público, que é de 0,4 Bq/L (MILVY; COTHERN, 1989; DESIDERI et al., 2007; SILVEIRA et al., 2007; SANTOS, 2009; CARDOSO, 2009).

As rochas ígneas tendem a conter concentrações mais elevadas que os arenitos e os calcários. Em rochas, este radionuclídeo se encontra geralmente em equilíbrio radioativo com ^{238}U . Rochas graníticas, metamórficas e depósitos sedimentares em regiões fosfáticas, possuem traços desse radionuclídeo.

Em solos, sua disponibilidade depende da geoquímica do urânio, sendo o ^{226}Ra o principal responsável pela produção do ^{222}Rn , que apresenta um risco potencial quando inalado, devido a seus produtos de decaimento (EISENBUD; GESELL, 1997; AMARAL, 1994; SANTOS JÚNIOR, 2009; MORAIS, 2013).

Como os níveis do rádio na natureza são extremamente baixos, ele se comporta como um elemento traço, cuja química é controlada por processos de coprecipitação e adsorção superficial. A coprecipitação ocorre com o cálcio, magnésio e até mesmo com o ferro e manganês. Entre os radionuclídeos naturais, o rádio é o elemento químico que tem o maior potencial de transferência entre os diferentes compartimentos ambientais, e dependendo das características do fluido e da fase sólida, pode ser facilmente removido para a fase aquosa, contribuindo para a exposição dos seres humanos à radiação natural (MCBRIDE, 1994; UNSCEAR, 2000; LAURIA et al., 2003; PAIVA, 2008).

Os horizontes superficiais dos solos podem ser enriquecidos em ^{226}Ra devido ao processo de circulação desse radionuclídeo promovido pela vegetação, uma vez que o mesmo pode ser transportado dos horizontes mais profundos para os mais superficiais através da adsorção pelas raízes dos vegetais (GREEMAN et al., 1999).

Portanto, torna-se importante compreender o comportamento do ^{226}Ra em solos superficiais porque há perda de seus produtos radioativos, especialmente o ^{222}Rn para o ambiente, que representa uma estimativa média de 55% da dose de radioatividade natural, juntamente com seus descendentes. Além disso, igualmente ao ^{40}K , o ^{226}Ra pode incorporar-se à cadeia alimentar através dos vegetais e se constituir, desta forma, em uma importante fonte de radioatividade.

As principais vias de incorporação do rádio no corpo humano são a ingestão de alimentos e água e a inalação. Ao ser ingerido, cerca de 21% é transferido para a corrente sanguínea, dos quais aproximadamente 85% é depositado nos ossos e o restante, uniformemente distribuído nos tecidos moles. Devido a sua similaridade química com o cálcio, quando dissolvidos das rochas,

esse radionuclídeo, também, torna-se parte integrante da cadeia biológica e, por isto, sua presença no organismo pode aumentar o risco estocástico de câncer (sarcoma e carcinoma de crânio) (UNSCEAR, 1982; AMARAL, 1994; KITTO et al., 2005; PAIVA, 2008).

Levando-se em conta sua capacidade de promover danos radiológicos, o rádio é considerado um dos mais importantes radionuclídeos de ocorrência natural, pois a sua meia-vida biológica é significativa, a fração incorporada geralmente diminui para menos de 10% em poucos meses, mas alguma quantidade pode permanecer por toda a vida (ICRP, 1978; UNSCEAR, 1982; SILVA, 2014a). O dano biológico mais severo é o câncer nos tecidos ósseos, pois os produtos de decaimento de meia vida-curta do ^{226}Ra e ^{228}Ra podem crescer até atingir o equilíbrio secular dentro do osso hospedeiro, contribuindo substancialmente para a dose de radiação (MAYS et al, 1985).

3.2.3 Tório

Assim como o urânio e o plutônio, o tório faz parte dos actinídeos, metais pesados e radioativos. Sua estrutura cristalina é cúbica de face centrada. No estado puro, o tório tem aspecto prata, é estável no ar e o brilho se mantém por vários meses. É denso, mole e dúctil, podendo ser trabalhado a frio, pois é estável à temperatura ambiente, não sendo afetado pela umidade, mesmo a 100 °C. Contudo, quando pulverizado é pirofórico. Se contaminado com o óxido, a cor muda gradualmente com a exposição ao ar, passando para cinza e preto.

As propriedades físicas do tório são bastante influenciadas pelo teor de contaminação com o seu óxido, sendo bem menos solúvel que o urânio e o potássio, não possuindo facilidade de mobilização no solo, exceto em decorrência da ação de agentes mecânicos, como o vento ou pelo processo de erosão (CUTHBERT, 1958; GRAINGER, 1958; GOMES, 2004; ANJOS et al., 2005; VASCONCELOS, 2010).

O tório tem seis isótopos naturais: ^{227}Th , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{231}Th , ^{232}Th e ^{234}Th , que são resultados dos decaimentos das três séries radioativas naturais: ^{235}U , ^{238}U e ^{232}Th . O ^{232}Th é o isótopo responsável por uma das principais séries radioativas naturais. Ele decai muito lentamente, a meia-vida física deste isótopo é $1,41 \times 10^{10}$ anos (aproximadamente três vezes a idade da Terra). É um emissor alfa com energias de 4,01 MeV (77,8%) e 3,95 MeV (22,1%), apresentando também emissão gama com energia de 63,8 keV (0,267%).

O ^{232}Th tem uma abundância de 100%, uma vez que os demais isótopos possuem meias-vidas curtas em comparação com a desse isótopo. Na sua série de decaimento radioativa, o mais importante radiologicamente é o ^{228}Ra , mas, também, é destacada a formação do ^{220}Rn , chamado torônio, e do ^{228}Ac (FIRESTONE et al. 1996; EISENBUD; GESELL, 1997; SANTOS JÚNIOR, 2009; VASCONCELOS, 2010; SILVA, 2015b).

A representação do tório na crosta terrestre é de aproximadamente 0,0015%. E ele surge normalmente associado a elementos terras raras e urânio, e mesmo estando presente na maioria das rochas e dos solos e aparecendo com frequência substituindo outros elementos em um grande número de minerais mais complexos, há uma escassez dos minerais desse elemento.

Nos solos, possui uma concentração média mundial de 9 mg/kg (SCHULZ, 1965), com uma atividade específica média mundial de aproximadamente 40 Bq/kg. Em rochas, as concentrações do tório na crosta terrestre podem variar de 1,6 mg/kg a 20 mg/kg, com uma média de 10,7 mg/kg, podendo atingir concentrações cerca de cinco vezes maiores do que a do urânio. Nas rochas graníticas, sua concentração pode chegar a uma média de 17 mg/kg, com atividade específica de aproximadamente 70 Bq/kg (FORTESCUE, 1992; GILL, 1996; EISENBUD; GESELL, 1997; SANTOS JÚNIOR, 2009; VASCONCELOS, 2010; SILVA, 2014b).

O estado de oxidação do tório é único, +4, com evidências de valências menores no estado sólido, apresentando como seus principais minerais a torita e a torianita. A solubilidade dos seus complexos é geralmente baixa, exceto em soluções ácidas. Entretanto, compostos orgânicos podem auxiliar na solubilidade do tório em condições de pH neutro.

O tório pode estar presente em alanita, monazita, xenotímio e zircão a níveis maiores do que 1.000 ppm ou em quantidades traço nos minerais principais. Os principais minerais de tório primário (monazita e zircônio) são estáveis durante o intemperismo e podem se acumular em minerais pesados em depósitos de areia (DICKSON; SCOTT, 1997). Por esta razão, este elemento foi considerado por muito tempo como imóvel e bastante insolúvel em águas naturais, como atestam dados de concentrações mínimas ou inexistentes nestes ambientes.

Esse radionuclídeo é um elemento de difícil dissolução, porém, a formação de complexos inorgânicos com os íons Cl^- , F^- e OH^- facilita sua mobilidade em meio hídrico. Ressaltando que a mobilidade do tório não é controlada apenas por complexos solúveis, mas, também, por estruturas sólidas, pois quando é liberado pela quebra de minerais durante o intemperismo pode ser retido em minerais hidratados ou oxidados a base de ferro ou titânio com argilas, sendo rapidamente

adsorvido e transportado em argilas coloidais e óxidos de ferro. Desta forma, possui um forte componente detrítico, especialmente em depósitos colúvio-aluvionares (GILL, 1996; PAIVA, 2008; MORAIS, 2013; SILVA, 2014b).

Estando presente na maioria das rochas e solos, o ^{232}Th apresenta um importante risco químico e radiológico à humanidade, tendo como principais vias de contaminação a ingestão por alimentos, água e a inalação de material particulado contaminado. Portanto, a sua radiotoxicidade está associada à sua ingestão, inalação ou absorção pela pele, pois sendo um emissor alfa, possui um poder de ionização elevado. As radiações emitidas pelos seus descendentes, também, podem ser prejudiciais à saúde, especialmente o ^{228}Ra .

Quando incorporado ao corpo humano, o tório tende a se acumular nos ossos (90%), fígado (6%), rins (4%) e nos órgãos reprodutores (0,01%), tendo um comportamento metabólico semelhante ao do plutônio. Sua meia-vida biológica é da ordem de 20 anos (ICRP, 1978; FORTESCUE, 1992; OLIVEIRA, 2008; SANTOS JÚNIOR, 2009).

3.2.4 Potássio

O potássio é o metal mais leve depois do lítio, tem aparência da prata, é maleável e é um excelente condutor elétrico e térmico. A maioria dos minerais de potássio é insolúvel, mas reage fortemente com a água e oxida-se rapidamente na presença do ar (VASCONCELOS, 2010).

Segundo Dickson e Scott (1997), esse elemento químico, com seus diferentes isótopos, é o maior componente da crosta terrestre. Ele é litófilo e está concentrado preferencialmente nas rochas ígneas ácidas, em relação às intermediárias, básicas e ultrabásicas.

O potássio é um termo genérico usado para uma grande variedade de minerais potássicos, o qual é obtido com grande dificuldade e em função de sua alta reatividade e afinidade com outros elementos nunca é encontrado livre na natureza (LIDE, 2005; SILVA, 2014a).

Os três isótopos do potássio que ocorrem naturalmente são: ^{39}K (93,088%), ^{40}K (0,0118%) e ^{41}K (6,9%). O ^{40}K é um radionuclídeo primordial, apresentando meia-vida de $1,28 \times 10^9$ anos, emissor de partículas beta com energia aproximadamente 1,31 MeV (89,3%), formando neste tipo de decaimento o isóbaro ^{40}Ca . O ^{40}K decai, também, pelo processo de captura eletrônica, emitindo raios gama com energia de 1,46 MeV (10,7%), formando outro isóbaro, o ^{40}Ar .

O ^{40}K tem meia-vida biológica de 30 dias e uma atividade específica de 31.400 Bq/kg, sendo responsável por 98% da emissão de radiação gama, quando relacionada à emissão dos radionuclídeos primordiais presentes na superfície terrestre (EISENBUD; GESELL, 1997; UNSCEAR, 2000; CARLOS, 2006; SANTOS JÚNIOR, 2009; MORAIS, 2013; COSTA, 2014).

O potássio é encontrado em rochas, solos, oceanos, lagos e salinas residuais de lagos salgados, embora nestas ocorrências raramente seja observado um teor superior a 10%. Teores mais elevados são observados nos minerais contendo silicatos de potássio (LIDE, 2005). Rochas graníticas ricas em cálcio podem conter até 2,5% de K (COX, 1991; SILVA, 2014b).

Devido à sua distribuição homogênea, abundância e emissão de raios gama, o ^{40}K contribui com aproximadamente 14% da exposição dos seres vivos à radiação natural com uma média mundial da concentração específica de 370 Bq/kg, variando de 100 a 700 Bq/kg. Contudo, em rochas sedimentares, o ^{40}K pode apresentar uma atividade específica que varia de 70 a 1.500 Bq/kg (MCAULAY; MORAN, 1988; SANTOS JÚNIOR, 2009; MORAIS, 2013).

Em rochas, o potássio total está contido em uma proporção que varia de 0,3 a 4,5%. Suas concentrações são baixas em basaltos e areias, considerando que rochas graníticas contêm, em geral, concentrações elevadas desse elemento. Embora os silicatos ricos em potássio, tais como o feldspato potássico, a muscovita e a leucita, contenham de 10 a 20% de K_2O , não necessariamente constituem importantes fontes de potássio, pois não são solúveis em água e suas estruturas não são rompidas com facilidade por meios artificiais.

O aproveitamento de rochas ígneas como fonte de potássio se limita a áreas de exploração de outras substâncias, onde o potássio é obtido como subproduto desse processamento. Os sais derivados desses depósitos constituem as mais importantes fontes potássio, pois os sais derivados desses depósitos são muito solúveis em água e podem ser explorados e processados mais facilmente.

Os principais minerais de potássio são: silvita (63%); carnalita (17%); cainita (19%); e langbeinita (23%) (EISENBUD; GESELL, 1997; DNPM, 2009; SANTOS JÚNIOR, 2009; SILVA, 2014b).

No corpo humano, o comportamento do ^{40}K é idêntico ao do respectivo nutriente, assemelhando-se ao potássio estável encontrado nos tecidos musculares, participando da manutenção do potencial de membrana e do mecanismo de excitação elétrica das células nervosas e musculares, pois ele é o cátion intracelular mais abundante.

Sua concentração apresenta-se constante devido ao equilíbrio homeostático (EL-ARABI, 2007; SILVA, 2014a), portanto, assim como os isótopos estáveis, o ^{40}K também é encontrado em todos os tecidos e órgãos do corpo humano e em conjunto com os produtos de decaimento das séries do ^{238}U e ^{232}Th são os principais contribuintes da radioatividade natural nas rochas (VASCONCELLOS et al., 1994; VASCONCELOS, 2010; LANHAM-NEW; LAMBERT, 2012; COSTA, 2014).

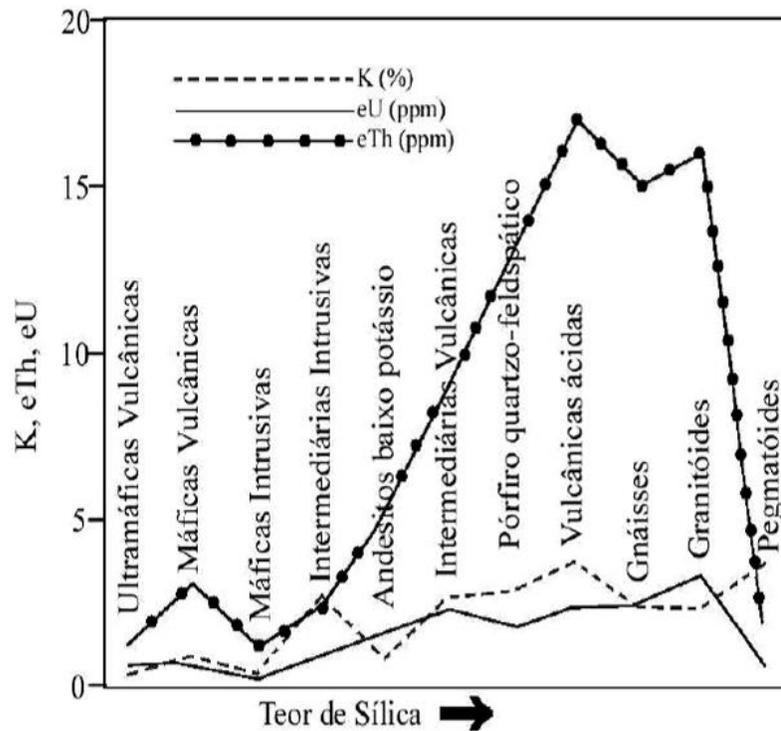
3.3 Distribuição de K, U e Th em Solos

Em geral os solos apresentam valores de radioatividade inferiores aos das rochas, porque, uma vez presente nos solos, os radionuclídeos podem ser absorvidos por plantas, ou ter sua concentração lentamente reduzida por processos de lixiviação (GREEMAN; ROSE, 1996; GREEMAN et al., 1999; OLIVEIRA, 2006).

Mas algumas coberturas de solos têm forte efeito na atenuação da intensidade dos raios gama. Portanto, ainda que a concentração relativa dos radionuclídeos nos solos permaneça praticamente a mesma que nas rochas fontes, ocorrerá a atenuação, e como resultado, as rochas podem apresentar uma radioatividade menor, mesmo que esses materiais sejam ricos em elementos químicos pesados, principalmente compostos ferromagnesianos (VASCONCELLOS et al., 1994).

Dickson e Scott (1997) analisaram teores de K, U e Th em rochas e solos australianos por espectrometria gama e concluíram que os teores mais elevados estão relacionados com o aumento do teor de SiO_2 , especialmente no caso dos teores de Th que, geralmente, mostra um crescimento muito maior do que o U e K. Assim as razões Th/U podem ser usadas como uma indicação do grau de diferenciação entre as suítes ígneas (VASCONCELLOS, 2010). Este comportamento é mostrado graficamente na Figura 4.

Figura 4 - K, eTh e eU em rochas ígneas e relação com o teor de sílica.



Fonte: DICKSON e SCOTT (1997) - Adaptada.

Mesmo materiais intensamente lixiviados mostram uma relativa elevação nos valores de concentração do urânio e do tório, pela acumulação de minerais resistentes e pela associação com as fases óxido, argilosa e carbonosa, principalmente no topo do horizonte A, onde estão os minerais de nível mais elevado, e no topo do horizonte B, que possui uma concentração maior de compostos de ferro e argilominerais e menor quantidade de matéria orgânica do que o horizonte A destes solos (REBELO et al., 2002; OLIVEIRA, 2006).

O ciclo sedimentar é de grande valia no entendimento da distribuição dos radionuclídeos naturais. Neste ciclo, a coerência entre as concentrações dos radionuclídeos é destruída devido às diferentes solubilidades desses elementos.

O urânio é facilmente oxidado para formar íon solúvel, enquanto o tório é carregado em suspensão melhor do que em solução, sendo facilmente fixado em argilas e resídeos secundários. Por isso, a razão Th/U varia muito nos sedimentos, dependendo em larga escala se a condição de deposição é um ambiente oxidante ou redutor (VASCONCELLOS et al., 1994; VASCONCELLOS, 2010).

Destacando que durante o intemperismo e migração da rocha para o solo, o rádio pode ser mobilizado em fase particulada, transportado e depositado como loess, sedimentos e solos

terciários, entretanto, parte do rádio pode se solubilizar em água e em seguida ser depositado no solo através de ação química ou biológica (IYENGAR, 1990; OLIVEIRA, 2006). A alteração também mobiliza o urânio e o rádio para fora da rocha. Eles são posteriormente redepositados por adsorção em óxidos ferrosos, matéria orgânica e minerais secundários. Por esse motivo, espera-se um aumento do teor do urânio e do rádio no horizonte B (EDSFELDT, 2001; OLIVEIRA, 2006).

3.4 Equilíbrio Radioativo

A maioria dos sistemas geológicos está em equilíbrio radioativo, ou seja, as atividades (número de desintegrações por unidade de tempo) são constantes para todos os radioisótopos de cada série envolvida. Isto se deve ao fato do elemento pai possuir meia-vida extremamente longa em relação a do elemento filho mais próximo (KAPLAN, 1978; VASCONCELOS, 2010).

As séries radioativas naturais ^{238}U , ^{235}U e ^{232}Th possuem propriedades físicas e químicas diferentes, com grande variação em suas meias-vidas. Quando o decaimento ocorre em um sistema fechado por períodos superiores a sete meias-vidas do radioisótopo de maior meia vida da série, as atividades de todos os produtos de decaimento passam a ser iguais àquela do isótopo que dá origem à série (KETCHAM, 1996).

Devido às diferenças nas propriedades químicas e nucleares (meia-vida, energia de recuo, etc.) dos elementos pertencentes às três séries naturais de decaimento, estes podem ser separados durante processos superficiais, tais como intemperismo, transporte e deposição, rompendo-se o estado de equilíbrio.

Materiais geológicos podem apresentar-se em desequilíbrio devido à entrada ou saída destes elementos do sistema. Se o sistema retornar à condição de fechado, o equilíbrio tende a ser restabelecido pelo acúmulo dos produtos de decaimento da série, ou pelo decaimento de um nuclídeo que não tenha sido produzido pelo decaimento de um nuclídeo pertencente ao sistema. Em condições geológicas de superfície (ou próximas a ela), este sistema químico fechado pode não existir (VASCONCELOS, 2010).

Para que ocorra o desequilíbrio radioativo, basta que um ou mais produtos de decaimentos sejam parcial ou completamente removidos ou adicionados ao sistema, podendo levar dias, semanas, meses ou até milhões de anos para estabelecer o equilíbrio, a depender das meias vidas dos radionuclídeos envolvidos (SANTOS JÚNIOR, 2009).

A série do urânio apresenta mais facilidade para a ocorrência do desequilíbrio radioativo. Este desequilíbrio ocorre devido ao fracionamento deste elemento, que é caracterizado pelos processos químicos (coprecipitação, adsorção, absorção) e físico (recuo nuclear).

O fracionamento do ^{226}Ra na série do ^{238}U deve-se ao escape do ^{222}Rn , que é um gás, e escapa com facilidade para a atmosfera oriundo de solos e fissuras nas rochas. Em laboratório, o equilíbrio radioativo secular é estabelecido para 10 meias-vidas do ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,8$ dias), ou seja, aproximadamente 40 dias (SANTOS JÚNIOR, 2009).

3.5 Espectrometria Gama

A espectrometria gama é um método geofísico que faz uso de medidas radiométricas para diferenciar litologias com base no conteúdo de radiação gama emitida durante o decaimento do potássio (K) e das séries do urânio (U) e do tório (Th). Este tipo de informação pode ser utilizado como auxílio ao mapeamento geológico porque os níveis radioativos das rochas podem ser correlacionados com sua idade e forma de ocorrência (SANTOS et al., 2013).

Essa técnica consiste na detecção dos raios gamas emitidos pelos isótopos radioativos presentes na amostra visando a estimativa da quantidade dos mesmos sem a necessidade de separação química dos elementos. Uma das grandes vantagens dessa técnica em relação a outras técnicas deriva da maior penetração da radiação gama na matéria, sendo um método não destrutivo de amostras. Além disso, as atividades de um número grande de radionuclídeos podem ser determinadas simultaneamente.

Em contrapartida, a espectrometria gama natural, também chamada de passiva, apresenta problemas de sensibilidade quando aplicada na análise de radionuclídeo em amostras com baixas concentrações, ou para as quais se dispõe de massa limitada (VASCONCELOS, 2010).

Para baixas energias, geralmente abaixo de 100 keV, ocorrem interferências da radiação de fundo, autoabsorção gama e efeitos secundários (AMARAL, 1987). Para evitar estas interferências, deve-se priorizar, sempre que possível, as análises dos fotopicos com energia localizada entre 120 e 1.500 keV, pois são as mais adequadas para análise com espectrometria gama.

A espectrometria gama é um método muito rápido, multielementar e não destrutivo, embora menos sensível que os métodos radioquímicos tradicionais.

O método pode ser considerado absoluto e relativo, porém, para aplicação de método absoluto, é necessária a construção de uma curva de eficiência, pois em espectrometria gama, a determinação exata da eficiência de contagem é o problema chave para medidas de radionuclídeos. Isto principalmente, com relação à escolha da fonte padrão adequada, que deve levar em consideração alguns parâmetros, tais como, densidade, semelhante às amostras de atividades desconhecidas, minimizando assim, a influência do efeito da autoabsorção (BOLIVAR et al., 1996; SANTOS JÚNIOR, 2009).

Este problema foi resolvido pela maioria dos laboratórios que trabalham com espectrometria gama, utilizando-se a própria matriz na análise para preparação do padrão, ou seja, diluição do padrão diretamente na matriz das amostras a serem analisadas (SANTOS JÚNIOR, 2005).

Embora muitos fatores que diferenciem um detector de outro, a escolha daquele que se aplica melhor à espectrometria gama envolve principalmente a análise de duas variáveis: a resolução de energia, que é a resposta para uma fonte monoenergética de radiação, e a eficiência de detecção, que representa a capacidade do detector de absorver por completo a energia de toda radiação gama que interagem em seu volume ativo, em uma determinada geometria (FERREIRA, 2012).

Por esses motivos, o detector mais adequado é o detector semicondutor de HPGe - High Purity Germanium, que fornecem uma boa resposta na detecção da radiação gama emitida por radionuclídeos naturais, sendo a sua alta resolução em alta energia a característica mais relevante, pois produzem picos estreitos e altos, que podem elevar-se sobre o ruído estatístico do espectro contínuo, eles são os detectores mais adequados para detecção de fontes fracas, de baixa atividade específica, com energias discretas e superpostas ao longo do espectro, o que possibilita a separação dos picos de energias muito próximo proporcionando assim, uma menor incerteza na medida e oferecem melhor desempenho nas medidas de fótons de baixa energia de amostras ambientais (KNOLL, 2000).

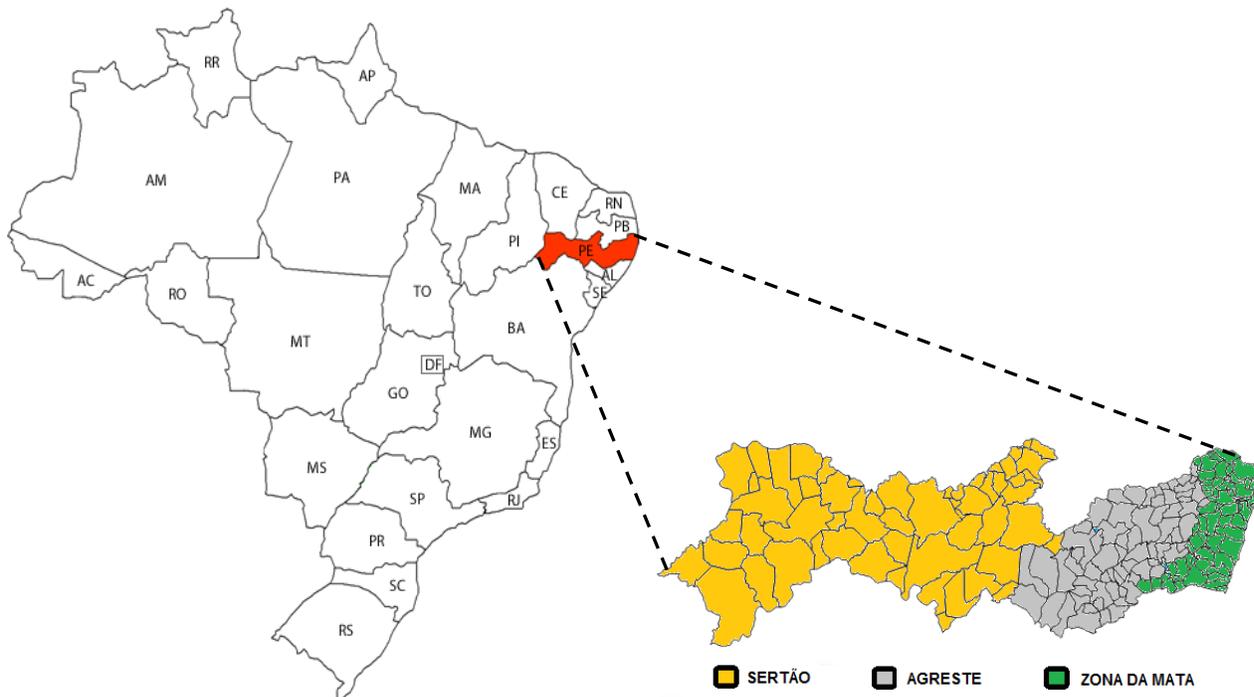
4. MATERIAIS E MÉTODOS

4.1 Área de Estudo

A área de estudo fica localizada no Estado de Pernambuco em destaque na Figura 5. Esse Estado é dividido em três regiões: Zona da Mata, Agreste e Sertão. Seu relevo contém planície litorânea com lagos e várzeas; planalto na região central (Planalto da Borborema); depressões a leste e oeste. Possui uma vegetação muito diversificada, com matas, manguezais e cerrados, além da grande presença da caatinga.

A economia se baseia na agricultura (cana de açúcar), na pecuária, nos serviços e na indústria: alimentícia, química, metalúrgica, eletrônica e têxtil (PERNAMBUCO, 2015).

Figura 5 - Localização do Estado de Pernambuco no Brasil e subdivisões estaduais.

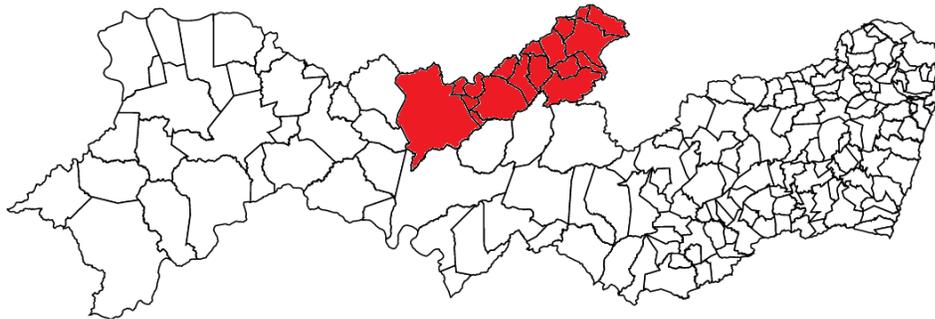


Fonte: DNIT (2014) – Adaptada.

Dentre as regiões, o estudo foi focado no Sertão, onde foram analisados solos de duas microrregiões: o Sertão do Pajeú e o Sertão do Moxotó.

Segundo o IADH, 2011, a microrregião do Sertão do Pajeú, localiza-se ao norte do Estado de Pernambuco (Figura 6), na chamada depressão semiárida ou sertaneja, uma das mais extensas desse estado, constituída por 17 (dezesete) municípios, a saber: Itapetim, Tuparetama, São José do Egito, Santa Terezinha, Brejinho, Afogados da Ingazeira, Tabira, Carnaíba, Quixaba, Iguaraci, Ingazeira, Solidão, Santa Cruz da Baixa Verde, Serra Talhada, Flores, Triunfo e Calumbí.

Figura 6 - Mapa da Localização Geográfica da Microrregião do Sertão do Pajeú/PE



Fonte: EMBRAPA (2000) – Adaptada.

No Sertão do Pajeú ao leste e ao sul, seus limites são muitas vezes marcados pelos ressaltos criados através de grandes amplitudes altimétricas, que atingem até 800 m. Essa unidade de paisagem apresenta uma grande diversidade litológica, no conjunto das rochas cristalinas do médio pré-cambriano. Em pequenas áreas, existem ainda rochas sedimentares de diferentes idades (cretáceas, jurássicas e devonianas) e depósitos do Terciário e Quaternário.

Nessa região, também ocorrem processos intensos de intemperismo físico e remoção de detritos pelo escoamento difuso e concentrado; litologias e estruturas geológicas truncadas pela erosão, com o conseqüente desenvolvimento de superfícies pediplanadas.

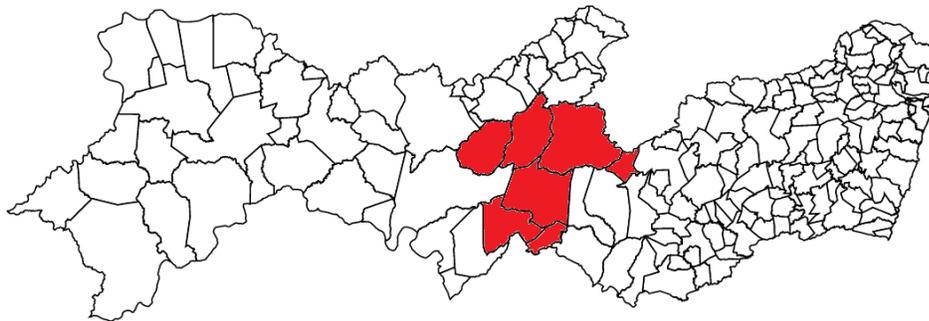
Em relação à vegetação, no Sertão do Pajeú ocorrem ainda muitas formações de caatinga nativa, onde uma visão geral da região indica que algumas áreas anteriormente vegetadas vêm progressivamente perdendo a capacidade produtiva em virtude dos avanços da erosão e da salinização.

Muitas formações arbóreas e arbustivas arbóreas exibem baixa diversidade e o impacto de extração de carvão, queimadas eventuais, e mesmo a agropecuária realizada sem a preocupação

com a capacidade suporte do ecossistema, têm contribuído para a redução da biodiversidade nativa e acentuação dos processos erosivos.

A microrregião do Sertão do Moxotó, localiza-se ao sul do Estado de Pernambuco (Figura 7), também, na chamada depressão semiárida ou sertaneja, que representa a paisagem típica do semiárido nordestino, constituída por 7 (sete) municípios: Arcoverde, Custódia, Manari, Sertânia, Betânia, Ibimirim e Inajá.

Figura 7 - Mapa da Localização Geográfica da Microrregião do Sertão do Moxotó/PE.



Fonte: EMBRAPA (2000) – Adaptada

O Sertão do Moxotó é caracterizado por uma superfície de pediplanação, com relevo geralmente suave-ondulado, vales profundos e estreitos dissecados. Nas superfícies suavemente onduladas a onduladas, ocorrem os solos Planossolos, medianamente profundos, fortemente drenados e ácidos à moderadamente ácidos e ainda ocorrem os solos Podzólicos, que são profundos e de textura argilosa.

Nas elevações, ocorrem os solos Litólicos, rasos e de textura argilosa. Nos vales dos rios e riachos, ocorrem os solos Planossolos, medianamente profundos, imperfeitamente drenados, textura média/argilosa, moderadamente ácidos, em que surgem problemas de sais nos vales dos rios e dos riachos, ocorrendo ainda afloramentos rochosos. Elevações residuais, cristas ou outeiros pontuam a linha do horizonte, sendo que os relevos isolados testemunham os ciclos intensos de erosão que atingiram grande parte do sertão nordestino.

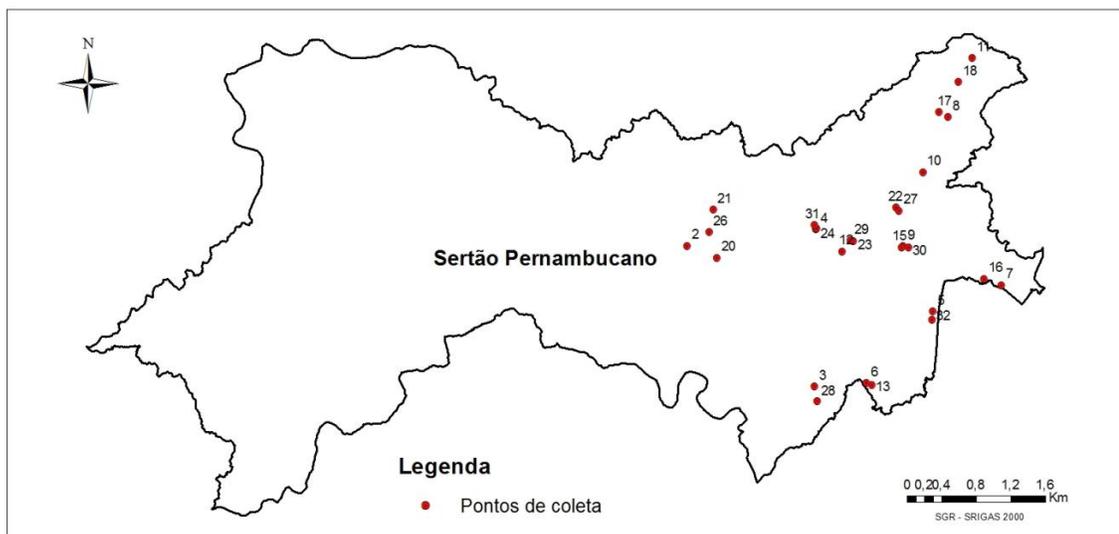
A vegetação é composta por caatinga apresentando porte variável, de caráter xerófilo, com grande quantidade de plantas típicas de terrenos com escassez de água, que a transforma em plantas secas, algumas sem folhagem, espinhosas, tipo bromeliáceas e cactáceas, e com alguns trechos

de Florestas Subcaducifólica e Caducifólica. Apesar da aridez do terreno, há nesse ambiente algumas regiões localizadas, geralmente próximas a serras, chamadas de brejos, onde a umidade é maior. Nessas zonas, o regime de chuvas costuma ser mais elevado, propiciando uma maior presença de água e solos mais férteis, altamente propícios para a agricultura. Destacando ainda que apresenta áreas susceptíveis à desertificação e, por estar situado no polígono das secas, possui clima quente e seco com chuvas de verão características próprias das áreas no Nordeste brasileiro (EMBRAPA, 2000).

4.2 Procedimentos de coleta das amostras

Amostras de diferentes solos do Sertão foram coletadas em 32 pontos (Figura 8), escolhidos de forma sistemática a partir dos critérios estabelecidos pelo Grupo de Biomassa do Departamento de Energia Nuclear em conformidade com procedimento da EMBRAPA e projeto intitulado “Impactos de mudanças climáticas sobre a cobertura e uso da terra em Pernambuco: geração e disponibilização de informações para o subsídio a políticas públicas”, desenvolvido pelo referido grupo com apoio da Proposta de Pesquisa Cooperativa em Mudança Climática Global, submetida pelo Edital 02-2009 FAPESP-FACEPE, onde algumas alíquotas de amostras coletadas no Sertão Pernambucano foram cedidas para o estudo dos radionuclídeos naturais.

Figura 8 - Mapa do Sertão de Pernambuco com a identificação dos pontos de coleta.



Fonte: Próprio autor (2016).

Para selecionar os pontos e atender aos critérios de análise dos radionuclídeos, foi priorizado o uso do solo e relações do homem com o ecossistema, caracterizando quatro tipos de cobertura (Tabela 3), em camadas distintas, 0-10, 10-20, 20-30, 30-40 e 40-60 cm de profundidade, o que totaliza 160 amostras. Para as coletas dos solos, foram abertas trincheiras de até 0,7 x 0,7 x 1,0 m, conforme recomendação da EMBRAPA (2009).

Na Tabela 3 é apresentado o detalhamento da mesorregião do Sertão, incluindo os tipos, usos e cobertura dos solos mais representativos da região, que atenderam as metas específicas do componente observacional deste trabalho.

Tabela 3 - Região do Sertão do Estado de Pernambuco, tipos, usos e cobertura do solo.

REGIÃO	SOLO	
	TIPO	USO E COBERTURA
Sertão	Planossolos	Caatinga densa
	Neossolos Quartzarênicos	Caatinga aberta
	Luvisolos	Agricultura
	Argissolos	Pastagem
	Neossolos Litólicos	

Fonte: EMBRAPA (2006).

A geração das classes de uso e cobertura dos solos foi descrita por interpretação visual, levando em consideração aspectos físicos como: tonalidade, textura, cor e forma, com base em imagens das épocas, chuvosa e seca acompanhada por uma validação de campo.

Para cada perfil de solo foram coletados 5,0 kg de cada amostra, acondicionadas em sacos plásticos e encaminhadas para o Laboratório de Radioecologia e Controle Ambiental (LARCA) no Departamento de Energia Nuclear da UFPE para tratamento e, posteriormente, análises radiométricas.

4.3 Tratamento das Amostras

No LARCA do DEN - UFPE, as amostras de solo foram devidamente preparadas para análises radiométricas, fazendo uso dos procedimentos estabelecidos pelo referido laboratório em

conformidade com os documentos técnicos estabelecidos pela Agência Internacional de Energia Atômica.

As amostras foram secas ao ar e passadas em peneira com abertura de 1,0 mm, sendo em seguida, homogeneizadas, quarteadas, e alíquotas de 100 g, armazenadas em recipientes de polietileno com capacidade volumétrica de 50 cm³.

Após os procedimentos acima e identificação de cada amostra, os recipientes contendo as amostras foram hermeticamente lacrados, dando início às análises radiométricas por espectrometria gama após um tempo mínimo de 40 dias, suficiente para garantia do estabelecimento do equilíbrio radioativo secular entre os radionuclídeos de meias-vidas curtas, descendentes das séries do urânio e tório naturais.

4.4 Padronização da metodologia radiométrica

Para a realização dos ensaios empíricos, foi realizada a padronização no Laboratório de Instrumentação Nuclear II (LIN-II) do Departamento de Energia Nuclear da UFPE e procedimentos operacionais, seguindo as recomendações estabelecidas pelo referido laboratório e sugeridas pela literatura (ARAÚJO, 2014; SILVA, 2014b). Nestes termos, a temperatura e umidade do laboratório foram mantidas em 22 ± 2 °C e $54 \pm 5\%$, respectivamente, a radiação de fundo devidamente controlada e monitorada, além do acesso dos operadores.

Além das condições laboratoriais, foram realizadas padronização do tempo de análise, geometria de contagem, posicionamento da amostra, regiões de interesse para mapeamento das transições gama e caracterização dos radionuclídeos, tensão de operação do detector, tempo morto e condições para cálculo das eficiências em energia (SANTOS JÚNIOR, 2009).

4.4.1 Sistema de medidas e arranjo experimental

A metodologia utilizada para investigação dos radionuclídeos naturais nas amostras de solo foi baseada em análise radiométrica não destrutiva, utilizando-se de um sistema de espectrometria gama de alta resolução, com detector do tipo HPGe-Be da marca: Canberra®, modelo GX2518 de geometria cilíndrica e coaxial, pertencente ao Laboratório de Instrumentação Nuclear II (LIN-II) do DEN - UFPE. O detector apresenta uma eficiência nominal de 25% e resolução de 1,8 keV para energia de 1.332 keV do ⁶⁰Co.

O sistema de detecção foi posicionado dentro de uma blindagem cilíndrica de Pb de massa igual a 600 kg, com espessura de 6,5 cm e uma superfície interna delgada constituída de camadas de Cd e Cu para minimizar os efeitos secundários da interação da radiação com a blindagem. O detector foi montado em um criostato com capacidade máxima para 30 L de nitrogênio líquido com consumo de aproximadamente 1,8 L/dia.

O arranjo experimental para as análises inclui o detector com ponto de operação do pré-amplificador ajustado para 3 kV e um sistema de multicanais do tipo Eagle Plus com 4.096 canais. O software de aquisição de dados utilizado foi o Genie 2k[®], também da Canberra[®], o qual permitiu realizar a manipulação dos espectros gama com correções específicas, qualificações e quantificações dos radionuclídeos de interesse.

O tempo de análise por amostra foi padronizado em 86.400 segundos, onde as amostras foram analisadas individualmente e posicionadas diretamente sobre a superfície do detector, neste caso, sem nenhuma interposição de barreiras e/ou “build-up” associado. O tempo morto foi corrigido automaticamente, minimizando as perdas e melhorando a eficiência de contagem por região de interesse.

As medidas permitem calcular as atividades específicas nos diferentes solos, possibilitando estimar os parâmetros de radioproteção responsáveis pela garantia do princípio ALARA (As Low As Reasonably Achievable), que estabelece as condições necessárias para proteger os indivíduos dos efeitos causados pelas radiações ionizantes (SANTOS JÚNIOR et al., 2009).

4.4.2 Modelo para calibração em energia

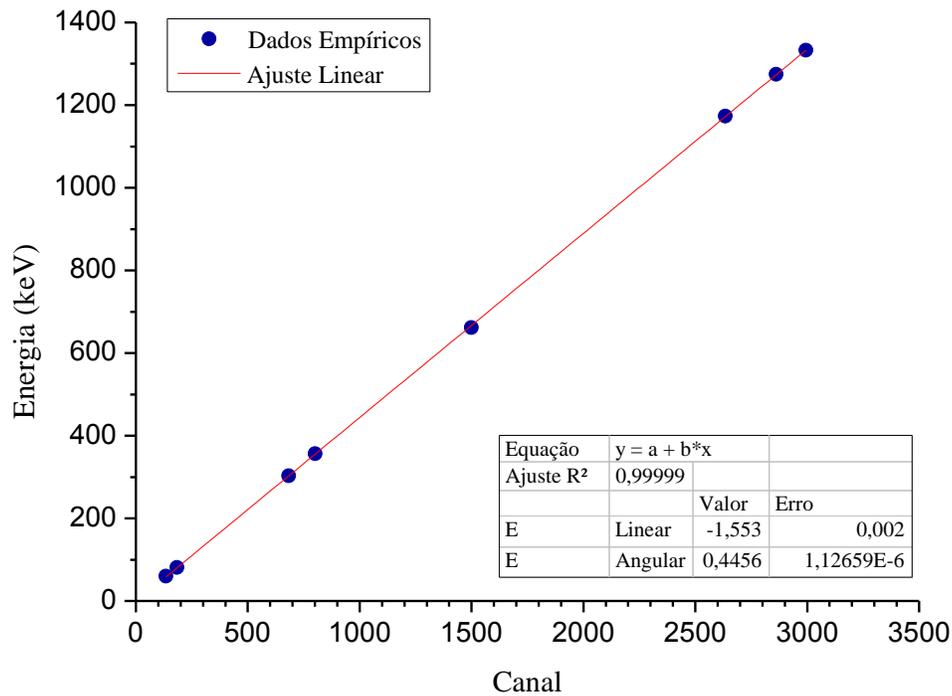
A calibração em energia, que apresenta como objetivo principal a padronização das regiões de interesse para qualificação dos radionuclídeos, foi realizada utilizando fontes radioativas de ²⁴¹Am, ¹³³Ba, ¹³⁷Cs, ⁶⁰Co e ²²Na conforme recomendações da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA) no documento técnico TECDOC 619 (IAEA, 1991).

Na Figura 9 pode ser observada a correção entre os canais do sistema Genie-2k[®] da Canberra[®] interligado ao detector gama e as energias dos fótons emitidos pelas fontes padrões, o que permitiu obter o modelo linear para correção dos dados e definição das regiões de interesse

utilizadas na caracterização do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , calculadas pela Equação 1, onde E representa a energia a ser determinada (keV) em função da localização do fotopico no canal central (C).

$$E = 0,445C - 1,553 \quad (1)$$

Figura 9 - Modelo de calibração em energia.



Fonte: próprio autor.

As medidas foram realizadas obedecendo aos mesmos critérios adotados para as amostras de solo, exceto quanto ao tempo de análise, padronizado em 3.600 s, tendo em vista que se trata de padrões radioativos secundários e específicos, cuja padronização das aquisições permitiu excelente condição para formalizar a estatística de contagem.

Pelos dados descritivos do quadro contido na referida figura, a correlação linear entre os dados empíricos e o modelo de ajuste foi de excelência, com r^2 de aproximadamente 1,0, o que confere uma precisão de excelente condição para qualificação dos radionuclídeos pelas emissões dos fótons gama associados.

4.4.3 Modelo para cálculo das eficiências

Um dos principais parâmetros para a utilização da espectrometria gama e cálculo das atividades radiométricas específicas é a curva de eficiência. A curva foi gerada em função de medidas experimentais e simulação em programa computacional.

Para obtenção dos dados empíricos foram preparados padrões secundários de ^{133}Ba , ^{241}Am e ^{152}Eu em matrizes de solo com densidades semelhantes as amostras da área de estudo. Após a confecção dos referidos padrões, foram realizadas medidas no detector gama obedecendo às mesmas configurações utilizadas para os ensaios com as amostras de solo, exceto quanto ao tempo de contagem, onde este foi padronizado em 3.600 segundos, otimizado em função da velocidade de desintegração de cada fonte radioativa.

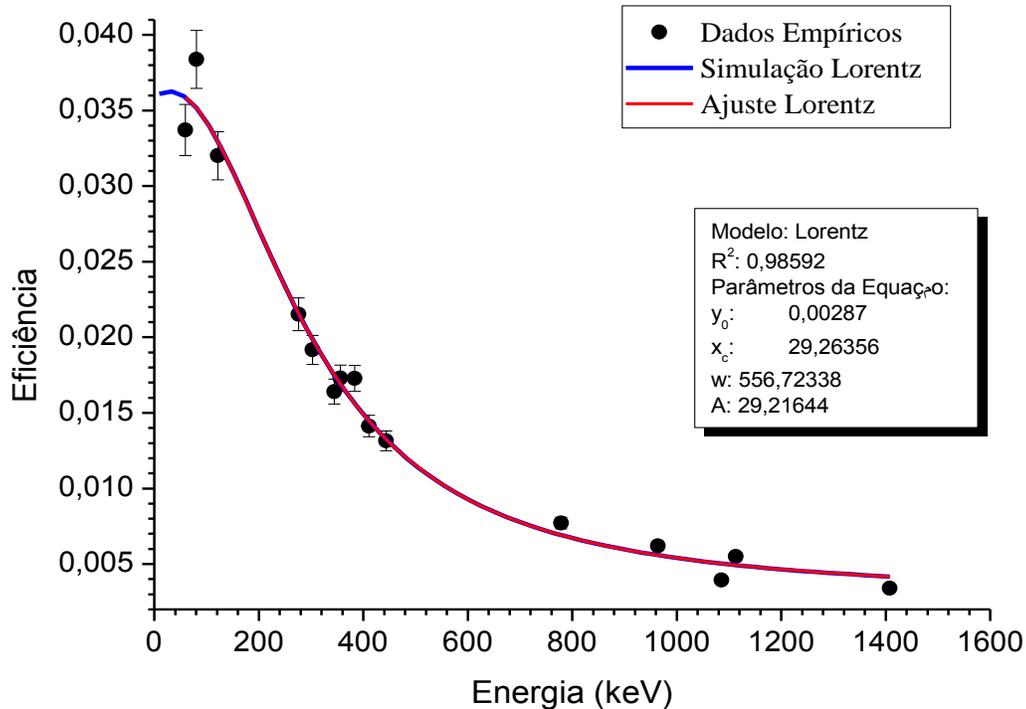
Com base na equação teórica, formulada pela IAEA (1989), Equação 2, e nos resultados obtidos nas medidas dos padrões secundários especificados acima, foi possível calcular as eficiências primárias para a faixa de energia compreendida entre aproximadamente 59 keV a 1.462 keV e que subsidiaram a obtenção do modelo matemático de ajuste e cálculos das eficiências dos radionuclídeos naturais.

$$\varepsilon = \frac{C}{A \cdot m \cdot \gamma \cdot t} \quad (2)$$

Na referida equação, ε representa a eficiência para a energia gama do padrão; C a área líquida do fotopico, determinada experimentalmente em contagens; A, a atividade específica gama do isótopo do padrão corrigida, em Bq/kg; m, a massa da amostra, em kg; γ , a probabilidade de emissão de radiação gama para a determinada energia; t é o tempo de contagem, em s.

Na Figura 10, encontra-se a curva de eficiência com o modelo adotado para determinação das eficiências em energias dos radionuclídeos naturais de interesse. A curva de calibração para a geometria de medida foi ajustada a uma função polinomial. Essa curva é considerada o ponto de partida na determinação das eficiências e, com base nesta, as atividades específicas dos radionuclídeos estudados.

Figura 10 - Modelo de calibração em eficiência.



Fonte: próprio autor.

Utilizando os parâmetros experimentais obtidos na curva de calibração da Figura 10, foi determinada a Equação 3, que permitiu corrigir os dados experimentais e determinar a eficiência em função das energias dos fotopicos.

$$\varepsilon = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{w}{4(E-x_c)^2 + w^2} \quad (3)$$

Nesta equação, ε representa a eficiência em energia; E a energia associada ao fóton; y_0 , A , w e x_c os parâmetros de ajustes da equação, os quais são apresentados no quadro da curva de eficiência (Figura 10).

Na Tabela 4, apresentam-se as eficiências em energia (ε) determinadas com a Equação 3, além de outros fatores como: radionuclídeo a ser estudado, radionuclídeo emissor (no caso da condição de equilíbrio radioativo secular), energia gama do fóton emissor (E_γ), probabilidade de

emissão gama (γ), foram utilizadas nos cálculos das atividades radiométricas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

Tabela 4 - Linhas gama de interesse.

Radionuclídeos	Emissor	E_γ (keV)	γ (%)	ϵ
^{238}U	^{234}Th	63,3	4,84	0,0358
	^{234}Th	93,0	5,58	0,0346
^{226}Ra	^{214}Pb	295,2	18,50	0,0203
	^{214}Pb	351,9	35,80	0,0171
	^{214}Bi	609,3	44,80	0,0091
^{232}Th	^{228}Ac	338,3	11,30	0,0178
	^{228}Ac	911,2	26,60	0,0059
	^{228}Ac	969,0	16,20	0,0056
^{40}K	^{40}K	1.460,9	10,67	0,0041

E_γ (keV): energia associada; γ (%): probabilidade de emissão gama; ϵ : eficiência para a energia gama do padrão

Conforme observado pelo descritivo da Tabela 4, as eficiências associadas ao sistema de detecção gama são baixas, diminuindo com o aumento da energia. Entretanto, o arranjo experimental e o modelo matemático obtido, possibilitaram os ajustes necessários para obtenção das atividades radiométricas com uma boa precisão e desvios mínimos.

4.4.4 Modelo para cálculo das atividades específicas experimentais

O modelo para obtenção dos resultados das atividades específicas experimentais (A) em Bq/kg para as amostras de solo analisadas foi pautado na equação definida pela IAEA (1989) e utilizada pelos laboratórios que trabalham com espectrometria gama (Equação 4), que necessita de parâmetros definidos anteriormente e calculados em termos de calibração, como é o caso das eficiências em energia (ϵ); alguns outros parâmetros definidos empiricamente e já tabelados, como por exemplo, a probabilidade de emissão gama (γ); parâmetros que dependem da análise das amostras de solo com mapeamento e medida gama dos fotopicos de interesse (C); além do tempo

de contagem (t) definido em função dos níveis de radioatividade das amostras, volume de material a ser analisado e energia gama específica.

$$A = \frac{C}{\varepsilon \cdot m \cdot \gamma \cdot t} \quad (4)$$

As atividades específicas do ^{40}K foram determinadas diretamente pela sua transição gama (ver Tabela 4). Entretanto, os resultados calculados para ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th foram definidos de forma indireta, como dito anteriormente, assumindo a condição de equilíbrio radioativo secular e fazendo uso de duas ou mais emissões gama dos seus descendentes, conforme energias e probabilidades de emissão especificadas na Tabela 4, cujas atividades específicas representativas, A_p , foram calculadas em função da média ponderada das atividades específicas por fotopico para cada radionuclídeo: A_1, A_2, \dots, A_n , tendo como pesos as probabilidades de emissão, $\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_n$ (Equação 5).

$$A_p = \frac{A_1\gamma_1 + A_2\gamma_2 + \dots + A_n\gamma_n}{\gamma_1 + \gamma_2 + \dots + \gamma_n} \quad (5)$$

As incertezas associadas às medidas experimentais foram definidas pelo próprio sistema Genie-2k[®].

4.4.5 Limite de detecção

O Limite de Detecção (LD), que corresponde aos valores mínimos detectados pelo sistema de medidas, possibilita verificar a representatividade da capacidade de detectar fótons gama na presença de interferências. O LD depende do tipo de amostra a ser analisada, da energia da radiação, da geometria de contagem, do tipo de detector, da radiação de fundo e do tempo de contagem (SCHEIBEL, 2006; SANTOS JÚNIOR, 2009).

Para o referido estudo, os LDs das energias utilizadas na quantificação do ^{238}U , do ^{226}Ra , do ^{232}Th e do ^{40}K , foram calculados as medidas da radiação de fundo do Laboratório de Instrumentação Nuclear II – (LIN-II) e a utilização da Equação 6, reformulada da IAEA (1989),

com σ representando o desvio padrão médio associado ao número de medidas do “background” e .o fator 4,66 que corresponde a um nível de confiança maior que 95%.

$$LD = 4,66 \times \sigma \quad (6)$$

Na Tabela 5, apresentam-se os valores dos limites de detecção obtidos para os radionuclídeos naturais avaliados no referido trabalho.

Tabela 5 - Limites de detecção para HPGe-Be.

RADIONUCLÍDEO	LD (Bq/kg)
²³⁸ U	2,8
²²⁶ Ra	0,6
²³² Th	0,2
⁴⁰ K	4,7

Os valores determinados para o urânio, rádio e tório levaram em consideração a média obtida em função dos diferentes limites para as energias utilizadas na descrição de cada radionuclídeo, conforme estabelecido na Tabela 4. O LD para o potássio foi estimado pelo seu único fóton gama.

Os LDs obtidos para ²²⁶Ra e ²³²Th se apresentaram menores. Isto ocorre devido às energias utilizadas para caracterização desses radionuclídeos, assim como, propriedades operacionais, probabilidades de emissão e menores interferências nas regiões associadas aos fotopicos.

4.5 Método para tratamento estatístico

Como alternativa para o tratamento estatístico dos resultados, foi utilizado um teste não paramétrico, neste caso, Kolgomorov-Smirnov, que teve como objetivo, descrever a relação dos dados com a possível hipótese nula, que define condições de comportamento uniforme para o conjunto de dados analisados.

O teste foi aplicado entre os resultados das atividades radiométricas obtidas por perfil para cada radionuclídeo, assim como, entre os pontos investigados (atividades acumuladas) e radionuclídeos, o que torna de grande relevância o entendimento da relação desses elementos

radioativos para com o meio ambiente, discrepância de valores e possíveis anomalias, contaminação ou migração.

Para o reconhecimento da eficiência na aplicação do referido teste, foram considerados os dados obtidos com a estatística descritiva, teste das médias e a relação do comportamento da distribuição por frequência, associada ao conjunto de modelos boxplot.

5. RESULTADOS E DISCUSSÃO

Os resultados obtidos no referido projeto foram calculados e expressos em termos de atividades específicas para os radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em diferentes perfis de solo do Sertão do Pajeú e do Sertão do Moxotó, conforme apresentados primariamente na Tabela 6. Essa tabela apresenta também as incertezas dos resultados, código das amostras e coordenadas geográficas dos pontos de coleta, os quais compreendem cinco perfis de solo para profundidades que chegam a 60 cm.

Tabela 6 - Resultados detalhados das atividades radioativas nos diferentes perfis do solo.

CÓDIGO	COORDENADAS		PERFIL (cm)	ATIVIDADE ± INCERTEZA (Bq/kg)			
	S	W		U-238	Ra-226	Th-232	K-40
SBTA10 (1)	ND	ND	00-10	53,6 ± 4,2	25,3 ± 0,8	2,2 ± 0,6	<LD
			10-20	59,3 ± 3,1	21,6 ± 0,3	<LD	<LD
			20-30	48,0 ± 2,1	24,2 ± 0,7	7,7 ± 1,2	<LD
			30-40	47,4 ± 3,6	31,2 ± 0,9	<LD	<LD
			40-60	<LD	<LD	<LD	<LD
SBTCD14 (2)	-38,55972	-8,24504	00-10	44,2 ± 2,3	25,5 ± 1,8	<LD	<LD
			10-20	33,7 ± 3,3	11,8 ± 0,8	6,9 ± 1,2	<LD
			20-30	45,9 ± 2,6	10,3 ± 0,4	14,1 ± 0,9	<LD
			30-40	<LD	<LD	<LD	<LD
			40-60	<LD	<LD	<LD	<LD
SSFA1 (3)	-37,96817	-8,89145	00-10	54,6 ± 3,2	27,0 ± 2,1	39,0 ± 2,5	2600,9 ± 29,2
			10-20	25,6 ± 2,9	13,8 ± 1,8	28,2 ± 2,2	2388,6 ± 27,6
			20-30	44,1 ± 2,5	33,2 ± 0,7	43,2 ± 1,8	2319,6 ± 27,5
			30-40	51,6 ± 3,3	36,6 ± 0,7	42,8 ± 2,0	2425,7 ± 27,7
			40-60	70,7 ± 3,3	38,5 ± 0,6	39,8 ± 5,1	2380,6 ± 28,5
SSFA3 (4)	-37,96160	-8,17015	00-10	71,0 ± 1,5	21,5 ± 1,0	40,6 ± 0,9	<LD
			10-20	73,1 ± 2,9	32,1 ± 0,7	54,6 ± 2,4	<LD
			20-30	46,5 ± 1,2	26,7 ± 0,7	<LD	<LD
			30-40	53,6 ± 2,9	20,3 ± 0,9	10,9 ± 1,5	<LD
			40-60	52,0 ± 2,8	37,5 ± 0,8	17,7 ± 2,1	<LD
SSFA5 (5)	-37,41829	-8,54667	00-10	27,6 ± 2,4	4,9 ± 0,3	2,1 ± 0,3	<LD
			10-20	29,0 ± 1,7	3,7 ± 0,4	5,1 ± 0,9	<LD
			20-30	23,6 ± 1,6	7,1 ± 0,4	<LD	<LD
			30-40	25,8 ± 2,0	4,0 ± 0,6	4,3 ± 0,8	<LD
			40-60	27,1 ± 1,9	9,3 ± 0,6	5,1 ± 6,4	<LD
SSFA6 (6)	-37,72692	-8,87434	00-10	32,2 ± 1,8	12,5 ± 1,3	<LD	<LD
			10-20	28,3 ± 1,9	14,4 ± 1,7	4,4 ± 0,1	<LD
			20-30	46,5 ± 1,9	13,9 ± 0,7	5,2 ± 0,5	5,4 ± 2,3
			30-40	34,6 ± 2,2	24,5 ± 0,8	<LD	<LD
			40-60	<LD	<LD	<LD	<LD

Continuação na página seguinte.

Continuação da Tabela 6.

SSFA7 (7)	-37,09972	-8,42556	00-10	25,8 ± 2,1	<LD	<LD	<LD
			10-20	102,5 ± 3,8	44,4 ± 1,1	49,5 ± 2,5	1749,0 ± 27,0
			20-30	53,1 ± 2,7	<LD	60,9 ± 2,8	1130,6 ± 19,0
			30-40	87,3 ± 3,8	43,8 ± 1,3	54,0 ± 1,9	2136,4 ± 2,9
			40-60	42,7 ± 2,7	50,5 ± 1,2	24,0 ± 2,1	1993,1 ± 27,5
SSFA8 (8)	-37,34611	-7,65361	00-10	143,6 ± 5,2	79,8 ± 0,6	<LD	<LD
			10-20	41,8 ± 4,2	31,9 ± 1,3	1,3 ± 0,9	<LD
			20-30	127,2 ± 4,5	57,1 ± 1,0	<LD	<LD
			30-40	65,8 ± 3,1	46,4 ± 1,0	26,8 ± 6,9	<LD
			40-60	104,0 ± 4,0	49,0 ± 1,3	43,8 ± 2,7	<LD
SSFCA4 (9)	-37,55567	-8,24750	00-10	91,3 ± 3,9	52,7 ± 1,0	39,3 ± 3,5	7,1 ± 4,8
			10-20	<LD	<LD	<LD	<LD
			20-30	75,2 ± 3,5	51,8 ± 0,6	53,9 ± 0,4	<LD
			30-40	61,1 ± 3,6	44,8 ± 1,3	5,7 ± 0,2	<LD
			40-60	53,7 ± 2,7	44,4 ± 1,1	5,7 ± 4,1	<LD
SSFCA8 (10)	-37,46261	-7,90744	00-10	75,5 ± 4,9	44,8 ± 0,7	<LD	<LD
			10-20	63,3 ± 3,3	37,2 ± 1,1	15,3 ± 2,7	<LD
			20-30	75,9 ± 4,9	30,5 ± 2,4	37,4 ± 2,7	11,3 ± 1,6
			30-40	84,1 ± 5,2	31,7 ± 1,1	<LD	<LD
			40-60	86,0 ± 4,0	34,2 ± 2,6	<LD	<LD
SSFCA11 (11)	-37,23459	-7,38319	00-10	144,7 ± 6,6	98,4 ± 1,9	51,9 ± 3,6	<LD
			10-20	149,9 ± 5,5	123,8 ± 2,0	48,8 ± 4,1	<LD
			20-30	186,0 ± 6,2	139,3 ± 1,9	48,4 ± 3,9	<LD
			30-40	139,5 ± 5,2	119,6 ± 1,0	88,5 ± 3,1	<LD
			40-60	136,3 ± 6,9	161,2 ± 2,0	87,3 ± 6,8	<LD
SSFCAA2 (12)	-37,83994	-8,27089	00-10	16,5 ± 1,2	40,3 ± 1,4	21,1 ± 1,2	454,4 ± 15,7
			10-20	<LD	<LD	<LD	<LD
			20-30	130,4 ± 6,4	94,8 ± 1,6	134,0 ± 3,4	928,9 ± 17,1
			30-40	<LD	42,5 ± 1,5	14,8 ± 1,8	449,7 ± 17,1
			40-60	28,1 ± 1,4	69,5 ± 1,8	83,0 ± 3,3	567,9 ± 17,5
SSFCA6A (13)	-37,70278	-8,88314	00-10	32,4 ± 1,9	7,81 ± 0,6	3,4 ± 1,4	<LD
			10-20	18,4 ± 2,0	2,0 ± 0,2	4,3 ± 0,6	<LD
			20-30	43,4 ± 2,2	13,5 ± 0,9	1,4 ± 0,5	<LD
			30-40	<LD	<LD	<LD	<LD
			40-60	34,1 ± 0,8	<LD	2,5 ± 0,4	<LD
SSFCD2 (14)	ND	ND	00-10	100,9 ± 3,9	44,9 ± 1,4	29,9 ± 2,4	5,0 ± 1,9
			10-20	117,9 ± 4,1	40,7 ± 1,2	<LD	<LD
			20-30	124,5 ± 4,4	56,0 ± 1,1	<LD	<LD
			30-40	108,8 ± 4,0	49,8 ± 0,9	3,6 ± 1,0	<LD
			40-60	95,1 ± 3,3	39,4 ± 1,0	6,7 ± 2,0	10,5 ± 0,5
SSFCD4 (15)	-37,56178	-8,25192	00-10	72,8 ± 4,0	53,8 ± 2,1	90,2 ± 2,9	<LD
			10-20	80,7 ± 5,3	191,7 ± 0,7	48,7 ± 3,5	<LD
			20-30	74,3 ± 5,1	52,5 ± 1,4	25,9 ± 3,0	<LD
			30-40	61,2 ± 4,8	46,3 ± 0,8	86,2 ± 3,4	<LD
			40-60	70,5 ± 3,4	43,1 ± 0,9	<LD	<LD

Continuação na página seguinte.

Continuação da Tabela 6.

SSFCD7 (16)	-37,17878	-8,39608	00-10	135,0 ± 5,1	47,3 ± 1,2	112,7 ± 2,5	1297,8 ± 24,3
			10-20	143,1 ± 5,5	52,8 ± 1,0	161,4 ± 3,0	<LD
			20-30	104,5 ± 4,4	51,4 ± 0,7	163,7 ± 4,4	<LD
			30-40	140,3 ± 7,0	54,5 ± 1,1	179,8 ± 4,7	<LD
			40-60	150,8 ± 7,5	64,7 ± 1,9	213,2 ± 2,9	<LD
SSFCD9 (17)	-37,38858	-7,63094	00-10	122,5 ± 6,4	76,3 ± 1,5	52,5 ± 2,8	<LD
			10-20	132,4 ± 6,4	88,6 ± 1,6	148,6 ± 3,0	1019,1 ± 21,0
			20-30	145,6 ± 6,5	85,7 ± 0,8	141,8 ± 4,3	<LD
			30-40	97,9 ± 4,1	70,0 ± 0,3	84,3 ± 1,9	<LD
			40-60	63,4 ± 6,8	57,2 ± 1,2	28,8 ± 2,5	<LD
SSFCD10 (18)	-37,29758	-7,49260	00-10	122,2 ± 3,6	42,9 ± 0,9	58,6 ± 5,9	<LD
			10-20	101,2 ± 3,9	56,3 ± 0,9	<LD	<LD
			20-30	120,8 ± 4,5	53,1 ± 0,6	<LD	<LD
			30-40	94,8 ± 5,4	43,7 ± 1,6	14,0 ± 0,9	<LD
			40-60	91,4 ± 3,8	36,4 ± 0,9	77,0 ± 2,7	<LD
SSFCD14 (19)	ND	ND	00-10	58,2 ± 3,0	55,4 ± 1,5	13,1 ± 1,5	6,6 ± 0,2
			10-20	50,2 ± 2,4	37,2 ± 1,2	8,9 ± 1,2	<LD
			20-30	49,2 ± 2,4	52,8 ± 1,0	12,3 ± 0,9	<LD
			30-40	71,4 ± 3,3	45,0 ± 0,7	4,2 ± 1,1	<LD
			40-60	67,5 ± 3,3	61,6 ± 1,2	8,5 ± 1,7	<LD
SSFCD21 (20)	-38,42169	-8,30047	00-10	<LD	<LD	<LD	<LD
			10-20	37,5 ± 1,8	12,7 ± 0,7	<LD	<LD
			20-30	28,5 ± 1,6	11,4 ± 1,4	6,4 ± 1,2	<LD
			30-40	28,6 ± 2,1	10,4 ± 0,4	4,3 ± 1,0	<LD
			40-60	32,4 ± 2,0	11,4 ± 0,6	<LD	<LD
SSFCD30 (21)	-38,43919	-8,07880	00-10	45,9 ± 3,0	14,2 ± 1,7	14,2 ± 3,6	<LD
			10-20	43,2 ± 1,9	23,3 ± 0,7	18,2 ± 1,9	<LD
			20-30	52,5 ± 2,8	21,4 ± 1,0	<LD	<LD
			30-40	44,1 ± 3,7	26,5 ± 1,1	16,3 ± 1,6	<LD
			40-60	51,0 ± 2,7	32,5 ± 0,5	17,2 ± 2,1	<LD
SSFCD32 (22)	-37,58800	-8,06919	00-10	25,7 ± 3,7	55,9 ± 1,0	26,8 ± 3,8	<LD
			10-20	75,8 ± 4,0	55,8 ± 1,3	<LD	<LD
			20-30	86,0 ± 2,6	58,9 ± 1,0	12,3 ± 4,4	<LD
			30-40	80,2 ± 3,3	41,6 ± 0,7	<LD	<LD
			40-60	41,2 ± 2,5	31,8 ± 1,0	<LD	<LD
SSFP2 (23)	-37,78765	-8,22399	00-10	80,4 ± 5,4	52,2 ± 2,1	76,9 ± 3,0	<LD
			10-20	99,9 ± 5,4	49,9 ± 1,1	45,6 ± 2,4	<LD
			20-30	116,0 ± 4,2	51,5 ± 1,4	<LD	34,2 ± 9,9
			30-40	95,8 ± 5,6	47,2 ± 0,5	<LD	<LD
			40-60	76,9 ± 5,1	49,06 ± 1,1	<LD	<LD
SSFP3 (24)	-37,95979	-8,16626	00-10	86,0 ± 3,8	43,0 ± 1,1	<LD	<LD
			10-20	100,1 ± 5,6	53,5 ± 1,4	<LD	<LD
			20-30	96,2 ± 4,0	56,1 ± 0,8	74,1 ± 2,0	<LD
			30-40	64,8 ± 3,4	50,0 ± 0,8	<LD	<LD
			40-60	71,1 ± 3,9	52,9 ± 1,6	<LD	<LD

Continuação na página seguinte.

Continuação da Tabela 6.

SSFP14 (25)	ND	ND	00-10	57,8 ± 2,6	28,5 ± 0,7	<LD	7,6 ± 0,6
			10-20	42,4 ± 2,4	18,8 ± 0,7	<LD	<LD
			20-30	82,0 ± 3,0	22,4 ± 0,5	8,1 ± 1,1	<LD
			30-40	65,5 ± 3,0	24,5 ± 1,1	11,6 ± 1,6	<LD
			40-60	74,9 ± 3,3	27,6 ± 2,3	26,8 ± 2,4	14,4 ± 1,0
SSFP20 (26)	-38,45873	-8,18286	00-10	283,8 ± 8,8	107,6 ± 1,5	279,1 ± 4,8	<LD
			10-20	272,5 ± 8,9	124,3 ± 2,0	281,4 ± 5,9	<LD
			20-30	230,6 ± 6,3	106,8 ± 2,0	214,8 ± 5,5	<LD
			30-40	287,0 ± 6,5	118,1 ± 2,2	166,2 ± 5,6	<LD
			40-60	287,5 ± 8,9	141,3 ± 2,1	7,9 ± 1,5	<LD
SSFP32 (27)	-37,57467	-8,08367	00-10	91,4 ± 4,0	57,7 ± 1,0	<LD	<LD
			10-20	107,1 ± 5,4	53,3 ± 1,1	<LD	<LD
			20-30	113,0 ± 5,6	67,9 ± 1,3	2,66 ± 0,6	22,2 ± 3,0
			30-40	76,8 ± 4,4	44,0 ± 1,0	28,4 ± 2,4	<LD
			40-60	61,0 ± 3,2	24,1 ± 2,0	24,3 ± 0,7	<LD
SSFPH1 (28)	-37,95647	-8,95803	00-10	48,6 ± 3,0	12,3 ± 0,7	21,3 ± 2,2	<LD
			10-20	49,1 ± 4,1	12,9 ± 0,7	15,2 ± 1,6	<LD
			20-30	<LD	<LD	<LD	<LD
			30-40	25,6 ± 2,2	<LD	<LD	40,9 ± 1,4
			40-60	<LD	<LD	<LD	<LD
SSFPH2 (29)	-37,80219	-8,22154	00-10	71,8 ± 4,4	41,50 ± 1,2	82,0 ± 2,8	498,9 ± 7,8
			10-20	72,0 ± 3,5	37,3 ± 1,0	70,5 ± 4,3	533,4 ± 17,2
			20-30	82,0 ± 3,5	30,2 ± 0,8	82,0 ± 2,7	591,8 ± 8,3
			30-40	59,6 ± 2,2	37,6 ± 1,1	58,2 ± 2,1	1008,5 ± 17,9
			40-60	36,0 ± 1,6	36,9 ± 2,6	63,0 ± 2,6	915,6 ± 16,1
SSFPH4 (30)	-37,53067	-8,25161	00-10	80,7 ± 5,4	25,5 ± 2,2	66,4 ± 1,3	<LD
			10-20	77,0 ± 3,2	32,6 ± 0,5	88,4 ± 0,6	<LD
			20-30	73,8 ± 3,5	38,5 ± 0,8	82,0 ± 2,2	668,8 ± 15,0
			30-40	74,0 ± 3,4	29,3 ± 1,6	28,2 ± 7,6	<LD
			40-60	61,7 ± 4,2	26,5 ± 2,0	30,0 ± 7,2	<LD
SSFPH3A (31)	-37,96743	-8,14945	00-10	<LD	11,3 ± 0,7	28,0 ± 1,4	1863,1 ± 35,7
			10-20	<LD	8,6 ± 0,6	28,0 ± 1,6	1603,0 ± 31,5
			20-30	<LD	8,0 ± 0,6	45,3 ± 2,6	1677,3 ± 31,5
			30-40	68,5 ± 6,1	46,8 ± 0,9	45,8 ± 3,0	2444,3 ± 28,5
			40-60	188,0 ± 5,1	47,6 ± 1,0	40,1 ± 2,1	2521,2 ± 29,1
SSFPH5A (32)	-37,42102	-8,58252	00-10	36,9 ± 1,7	27,0 ± 0,6	3,0 ± 0,5	<LD
			10-20	32,6 ± 1,6	15,8 ± 0,4	1,8 ± 0,5	<LD
			20-30	30,2 ± 1,8	18,8 ± 0,8	<LD	<LD
			30-40	41,1 ± 2,6	24,0 ± 0,5	4,0 ± 0,1	<LD
			40-60	27,2 ± 1,1	23,4 ± 1,5	4,8 ± 1,0	<LD

ND: não definido; (N°): representa as abscissas usadas nas curvas de Atividade x Amostras.

LD: limite de detecção (^{238}U : 2,8; ^{226}Ra : 0,6; ^{232}Th : 0,2; ^{40}K : 4,7) Bq/kg.

Os resultados obtidos para o ^{238}U , o ^{226}Ra , o ^{232}Th e o ^{40}K variaram de $16,5 \pm 1,2$ Bq/kg a $287,5 \pm 8,9$ Bq/kg; $2,0 \pm 0,2$ Bq/kg a $191,7 \pm 0,7$ Bq/kg; $1,3 \pm 0,9$ Bq/kg a $281,4 \pm 5,9$ Bq/kg e $5,0 \pm 1,9$ Bq/kg a $2.600,9 \pm 29,2$ Bq/kg, respectivamente. O resultado global permite observar que as atividades específicas obtidas para ^{40}K são bem mais expressivas quando comparadas aos demais radionuclídeos, cujos níveis, são justificados no trabalho de Ajayi et al. (2009), que retrata a presença de feldspato, mica e minerais de argila agregados às rochas que originam os solos dessas regiões (AVWIRI; ONONUGBO, 2012), provável consequência para justificativa dos altos níveis do referido radionuclídeo em alguns pontos da área de estudo.

Para promover maior visibilidade em termos comparativos, são apresentadas as Figuras 11, 12, 13 e 14 que mostram a situação comportamental dos níveis de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nos diferentes perfis dos 32 pontos investigados.

Conforme observado pelos dados dessas figuras, tem-se claramente evidências de comportamentos semelhantes para os níveis de ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th , com grande discrepância dos dados obtidos para o ^{40}K em alguns pontos e perfis específicos.

Figura 11 - Atividades específicas do ^{238}U em cada perfil do solo por ponto amostral.

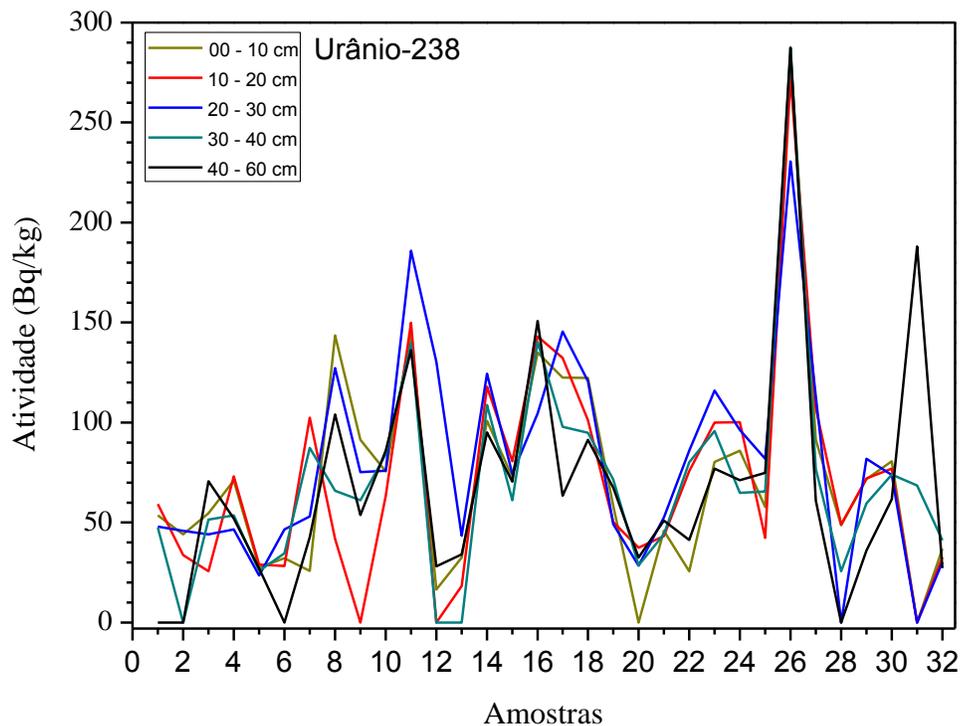


Figura 12 - Atividades específicas do ^{226}Ra em cada perfil do solo por ponto amostral.

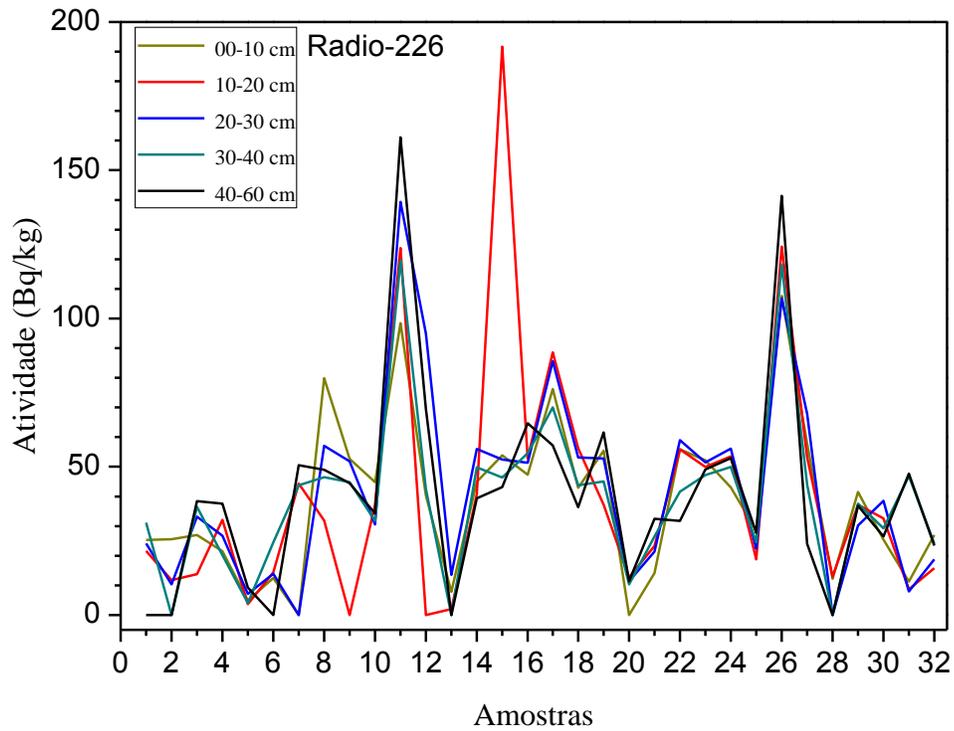


Figura 13 - Atividades específicas do ^{232}Th em cada perfil do solo por ponto amostral.

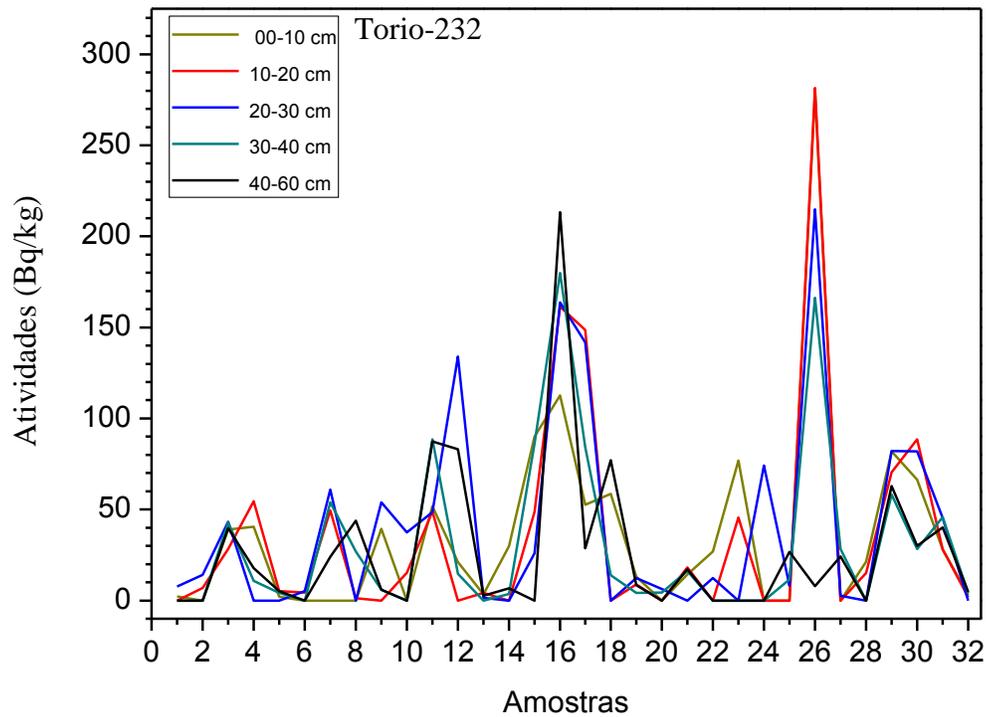
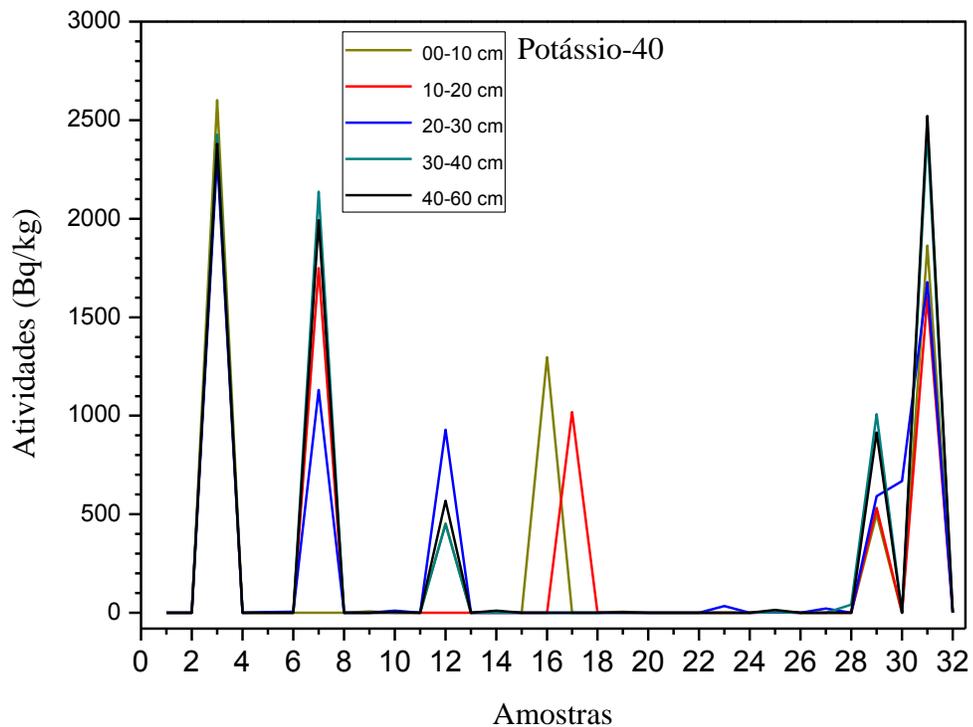


Figura 14 - Atividades específicas do ^{40}K em cada perfil do solo por ponto amostral.



Essas figuras confirmam a relação de distribuição não normalizada para os dados por perfil, conjunto total de amostras e radionuclídeos, relacionando os quartis, que são extremamente diferenciados para o ^{40}K , assim como, média aritmética e mediana.

Na Tabela 7 é apresentada a estatística descritiva para os radionuclídeos analisados, investigando o comportamento por perfil e o total de pontos analisados, que neste caso, incluem todas as amostras coletadas na região, que compreende um total de 146. Neste caso, a quantidade de amostragem dos perfis foi padrão para cada ponto de coleta. Entretanto, na estatística descritiva, os resultados abaixo do limite de detecção foram condição de exclusão, o que caracteriza diferentes números de amostras por perfil e radionuclídeo.

Comparando os valores obtidos para as médias aritmética (MA), mediana (MN) e moda (MO), observa-se que em todas as situações existem tendências dos dados descreverem situação de heterogeneidade na distribuição desses radionuclídeos, principalmente quando comparados com as médias para o ^{232}Th e o ^{40}K , fato confirmado pelos coeficientes de assimetria (G1), que são todos positivos para o ^{238}U , o ^{226}Ra e o ^{232}Th e negativos para alguns dos perfis do ^{40}K .

Tabela 7 - Estatística descritiva para os radionuclídeos estudados no solo.

RN	PERFIL	PARÂMETRO DESCRITIVO								
		N	*MÍN.	*MÁX.	*MA	*DP	*MN	*MO	G1	G2
U-238	00-10	28	16,5	283,9	78,7	54,9	71,4	38,8	2,0	6,2
	10-20	27	18,4	272,5	80,4	53,5	73,1	39,5	1,9	5,2
	20-30	28	23,6	230,6	87,0	49,1	78,6	40,8	1,1	1,4
	30-40	27	25,6	287,0	77,8	51,4	65,8	47,3	2,8	10,3
	40-60	26	27,1	287,5	77,9	58,3	62,6	48,8	2,3	6,1
	Total	146	16,5	287,5	79,2	51,4	70,9	67,0	2,0	5,3
Ra-226	00-10	30	4,9	107,6	41,3	25,6	42,2	47,7	0,8	0,6
	10-20	30	2,0	191,7	43,4	41,3	34,9	17,8	2,1	5,2
	20-30	30	7,1	139,3	44,9	31,4	44,9	40,2	1,2	1,6
	30-40	29	4,0	119,6	43,3	25,0	43,7	52,2	1,8	4,6
	40-60	27	9,3	161,2	48,2	33,2	39,4	47,2	2,4	6,3
	Total	146	2,0	191,7	44,1	31,5	40,5	37,7	1,9	4,8
Th-232	00-10	23	2,1	279,1	50,2	58,4	39,0	25,2	2,9	10,8
	10-20	22	1,3	281,4	51,6	67,8	28,1	29,3	2,3	5,8
	20-30	23	1,4	214,8	55,6	58,2	43,2	19,2	1,4	1,3
	30-40	23	3,6	179,8	42,7	49,5	26,8	18,3	1,7	2,6
	40-60	22	2,5	213,2	39,0	46,8	25,5	23,6	2,7	8,9
	Total	113	1,3	281,4	47,8	55,9	28,2	18,8	2,2	5,2
K-40	00-10	9	5,0	2.600,9	749,0	956,9	454,4	329,5	1,1	1,1
	10-20	5	533,4	2.388,6	1.458,6	710,5	1.603,0	1.151,8	-0,1	-0,5
	20-30	10	5,4	2.319,6	739,0	793,9	630,3	584,0	0,9	0,1
	30-40	6	40,9	2.444,3	1.417,6	1.057,0	1.572,5	2.143,8	-0,3	-2,4
	40-60	7	10,5	2.521,2	1.200,5	1.085,5	915,6	1.265,9	0,1	-2,2
	Total	37	5,0	2.600,9	1.036,0	931,7	915,6	221,3	0,4	-1,4

RN: radionuclídeos; N: tamanho da amostra; MÍN.: valor mínimo; MÁX.: valor máximo; MA: média aritmética; DP: desvio padrão; MN: mediana; MO: moda; G1: assimetria; G2: curtose; *Bq/kg.

A relação de distribuição não uniforme foi certificada pelo estudo da distribuição de frequência baseado no modelo de Gauss, conforme apresentado pelas caixas de dados das Figuras 15, 16, 17 e 18, descritas por perfil e com base em todos os dados do conjunto de amostras analisadas para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , respectivamente.

Estatisticamente, do ponto de vista da análise da média aritmética, observa-se mais uma vez que os valores médios por perfil são poucos divergentes para o ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th , um comportamento de semelhança bem expressiva, exceto para o ^{40}K , que é bastante diferenciado nos perfis analisados.

Para analisar os níveis de radioatividade total por ponto amostrado, foi realizado o somatório das atividades individuais obtidas para os perfis, caracterizando a atividade total de cada ponto vinculado a uma coordenada geográfica específica. Na Tabela 8 contém esses resultados acumulados em cada ponto para os radionuclídeos investigados.

Figura 15 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{238}U em solo.

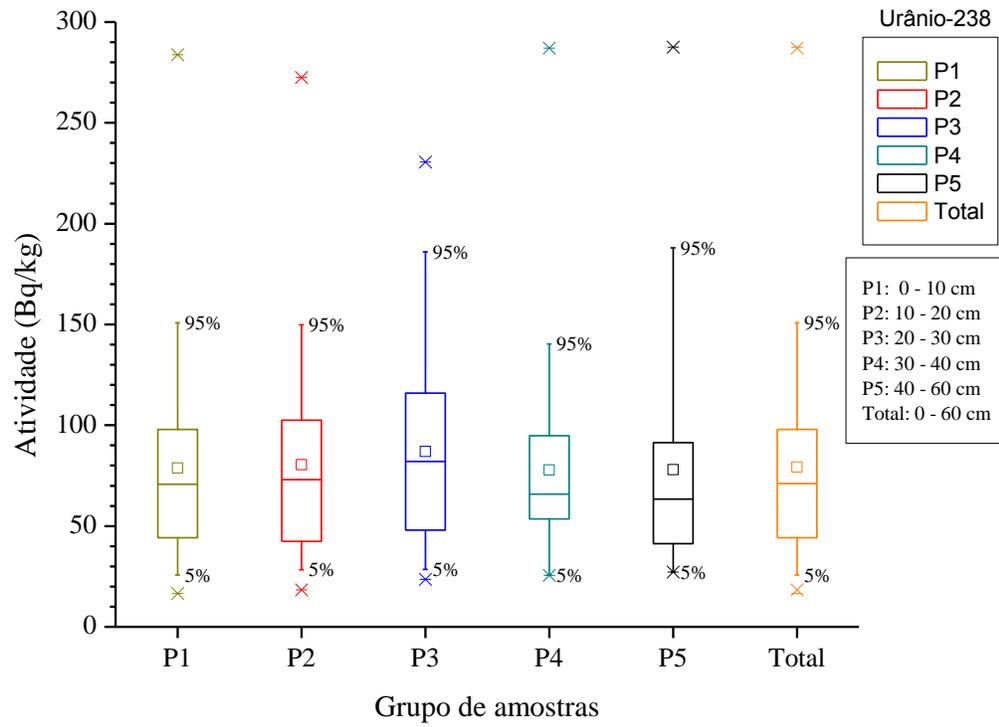


Figura 16 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{226}Ra em solo.

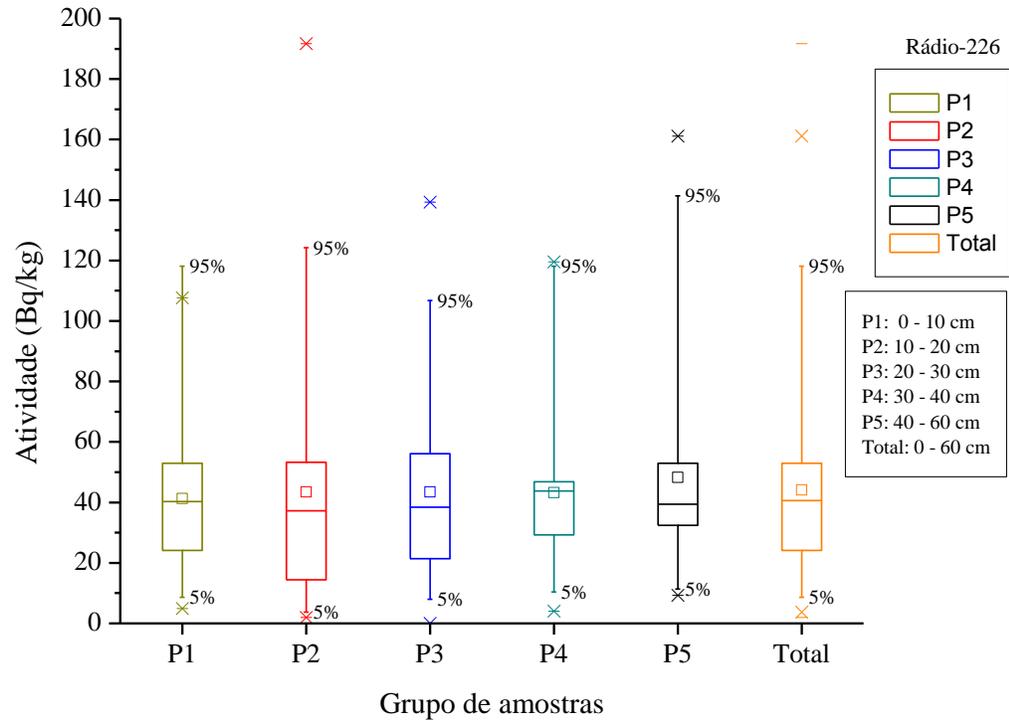


Figura 17 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{232}Th em solo.

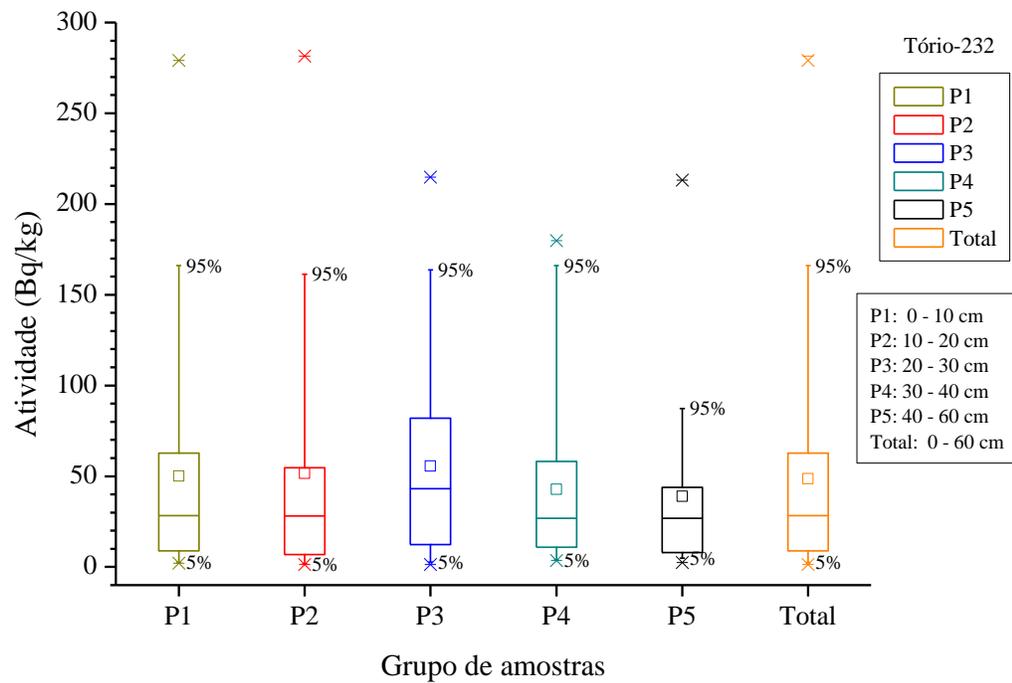


Figura 18 - Caixas de dados para os diferentes perfis e conjunto de amostras do ^{40}K em solo.

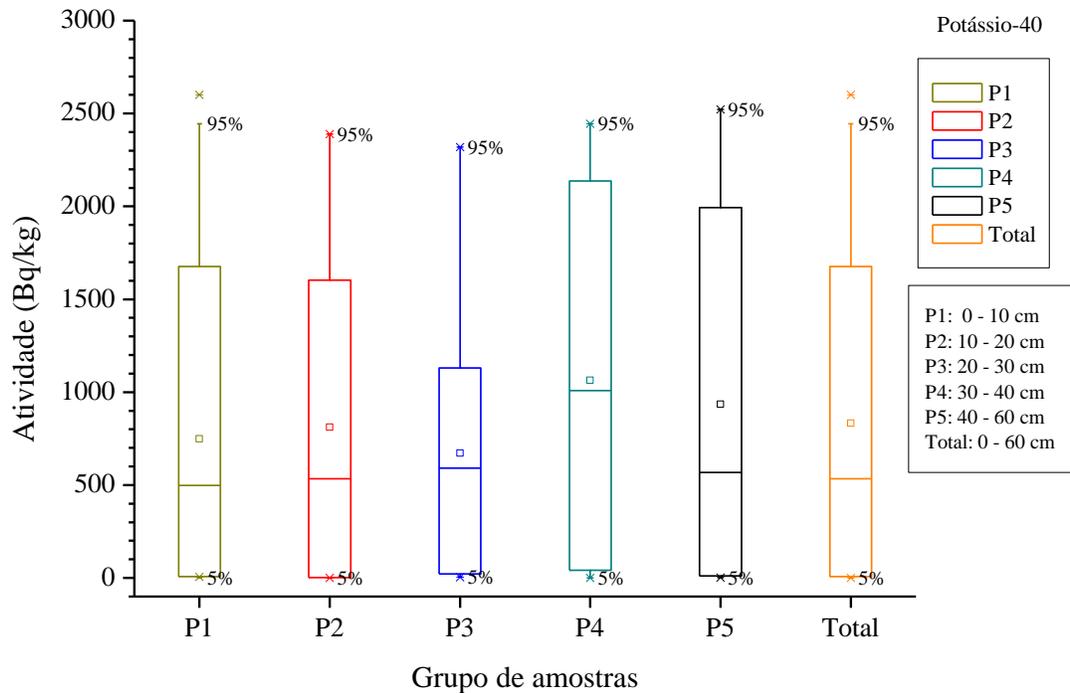


Tabela 8 - Resultados das atividades acumuladas por ponto.

CÓDIGO	COORDENADAS		ATIVIDADE TOTAL POR PONTO (Bq/kg)			
	S	W	U-238	Ra-226	Th-232	K-40
SBTA10	ND	ND	208,3	102,1	9,9	< LD
SBTCD14	-38,55972	-8,24504	123,8	47,6	21,0	< LD
SSFA1	-37,96817	-8,89145	246,6	149,0	193,1	12.115,2
SSFA3	-37,96160	-8,17015	296,2	138,1	123,8	< LD
SSFA5	-37,41829	-8,54667	133,1	29,0	16,6	5,1
SSFA6	-37,72692	-8,87434	141,6	65,2	9,6	6,6
SSFA7	-37,09972	-8,42556	311,4	138,7	188,3	7.009,1
SSFA8	-37,34611	-7,65361	482,3	264,3	71,9	< LD
SSFCA4	-37,55567	-8,24750	281,3	193,7	104,9	7,1
SSFCA8	-37,46261	-7,90744	384,8	178,4	52,6	14,81
SSFCA11	-37,23459	-7,38319	756,3	642,2	324,7	< LD
SSFCAA2	-37,83994	-8,27089	1745,0	247,1	253,0	2.400,8
SSFCA6A	-37,70278	-8,88314	128,3	23,3	11,6	< LD
SSFCD2	ND	ND	547,3	230,7	40,2	15,50
SSFCD4	-37,56178	-8,25192	359,5	387,5	250,9	< LD
SSFCD7	-37,17878	-8,39608	673,7	270,7	830,7	1.297,8
SSFCD9	-37,38858	-7,63094	561,9	377,7	456,1	1.019,1
SSFCD10	-37,29758	-7,49260	530,5	232,4	149,5	< LD
SSFCD14	ND	ND	296,6	252,0	47,0	9,5
SSFCD21	-38,42169	-8,30047	127,0	45,8	10,7	< LD
SSFCD30	-38,43919	-8,07880	236,6	117,8	65,9	< LD
SSFCD32	-37,58800	-8,06919	308,9	244,1	39,2	< LD

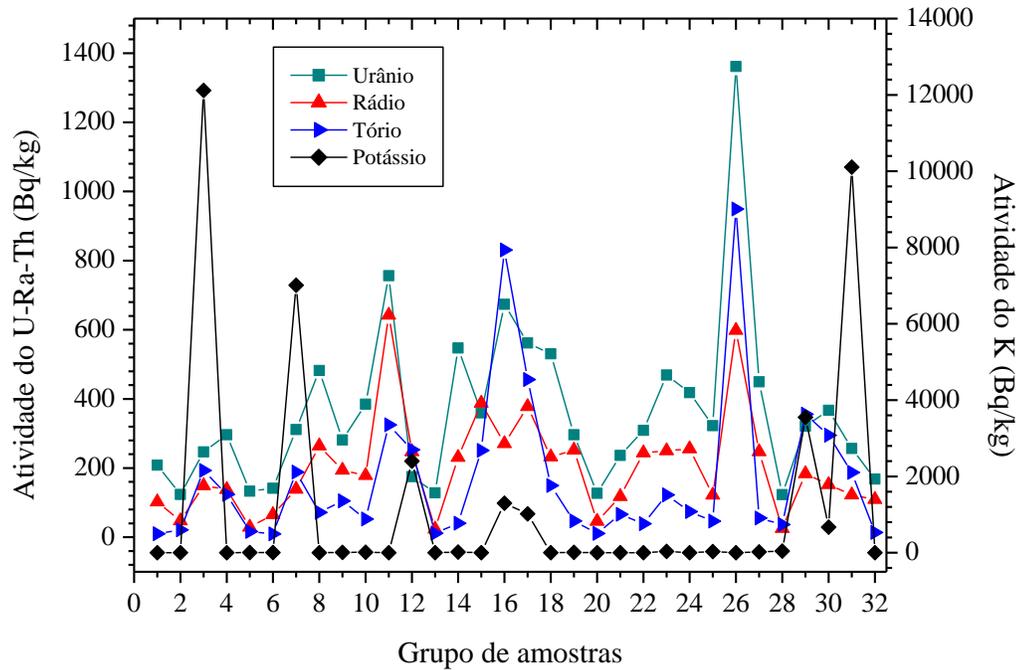
SSFP2	-37,78765	-8,22399	469,0	249,8	122,4	34,2
SSFP3	-37,95979	-8,16626	418,2	255,5	74,1	< LD
SSFP14	ND	ND	322,5	121,8	46,5	30,5
SSFP20	-38,45873	-8,18286	1.361,6	598,1	949,4	< LD
SSFP32	-37,57467	-8,08367	449,2	247,0	55,3	22,2
SSFPH1	-37,95647	-8,95803	123,3	25,2	36,4	41,5
SSFPH2	-37,80219	-8,22154	321,3	183,4	355,6	3.548,3
SSFPH4	-37,53067	-8,25161	367,1	152,3	295,1	668,8
SSFPH3A	-37,96743	-8,14945	256,6	122,4	187,3	10.108,9
SSFPH5A	-37,42102	-8,58252	168,1	109,0	13,6	< LD

ND: não definido; LD: limite de detecção (^{238}U : 2,8; ^{226}Ra : 0,6; ^{232}Th : 0,2; ^{40}K : 4,7) Bq/kg.

Analisando os dados vinculados a Figura 19, tem-se ideia da distribuição das atividades de cada radionuclídeo ao longo da área de estudo, cujos níveis de potássio não foram detectados em aproximadamente 75% das amostras analisadas. Entretanto, níveis bem significativos foram medidos em pontos isolados, com atividade máxima superior a 12 kBq/kg, fato que conduz a futuras investigações para certificação da origem desse radionuclídeo no solo da região.

Para os outros radionuclídeos, cuja escala de atividade radiométrica foi bastante diferenciada do ^{40}K , ocorre uma proporção dos níveis no meio ambiente, que a princípio, não caracteriza nenhuma interferência de anomalias decorrentes desses radionuclídeos naturais.

Figura 19 - Radionuclídeos acumulados por ponto de amostragem em solo.



Quanto a Figura 20, observa-se o comportamento das atividades acumuladas por ponto de amostragem e radionuclídeo, configurando distribuições assimétricas, fato caracterizado pela dispersão dos quartis e divergências entre as médias, aritmética e a mediana.

Para certificar o tipo de distribuição associada ao estudo estatístico dos resultados, foi priorizada a aplicação do teste não paramétrico de Kolmogorov-Smirnov, cuja hipótese nula, caracteriza distribuição normal.

A Tabela 9 contém os resultados das atividades radiométricas dos testes para os diferentes perfis do solo e conjunto total de amostras. Para o urânio, H_0 foi rejeitado nos perfis P1 e P3 e aceito para os demais, incluindo o total, que sofreu influência da maioria; o rádio foi rejeitado para os três primeiros perfis; tório, aceita a hipótese para P1, P3, P4 e total; potássio, H_0 aceito para todos os perfis, consequentemente, para o total.

No contexto geral, apesar de haver assimetrias, conforme mostradas anteriormente, existem tendências para distribuições normalizadas em todas as situações, justificadas para esse tipo de estudo em função das baixas atividades obtidas para maioria das amostras do projeto.

Figura 20 - Caixa de dados para atividades acumuladas por ponto de amostragem em solo.

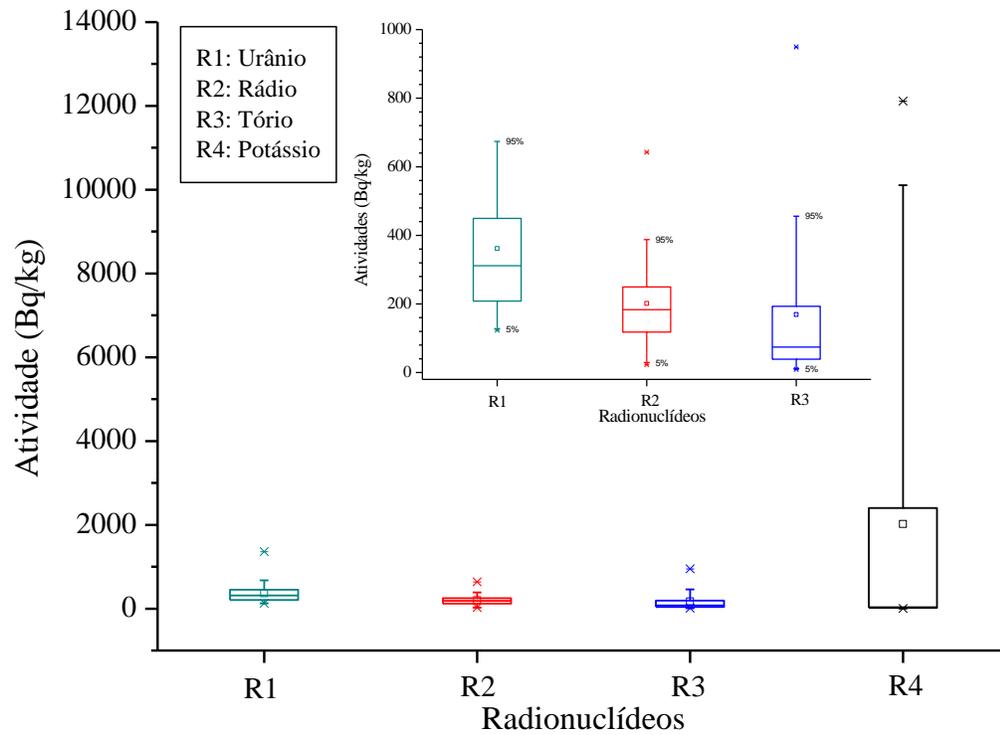


Tabela 9 - Teste de Kolmogorov-Smirnov para os radionuclídeos naturais em solo.

PERFIL	KOLMOGOROV – SMIRNOV								
		U-238/H ₀		Ra-226/H ₀		Th-232/H ₀		K-40/H ₀	
P1	D _α	0,240	Rejeitar	0,240	Rejeitar	0,280	Aceitar	0,440	Aceitar
	D _n	0,242		0,242		0,275		0,430	
P2	D _α	0,254	Aceitar	0,240	Rejeitar	0,280	Rejeitar	0,440	Aceitar
	D _n	0,246		0,242		0,281		0,430	
P3	D _α	0,240	Rejeitar	0,240	Rejeitar	0,280	Aceitar	0,400	Aceitar
	D _n	0,242		0,242		0,275		0,391	
P4	D _α	0,254	Aceitar	0,254	Aceitar	0,280	Aceitar	0,470	Aceitar
	D _n	0,246		0,246		0,275		0,454	
P5	D _α	0,258	Aceitar	0,262	Aceitar	0,280	Rejeitar	0,440	Aceitar
	D _n	0,250		0,255		0,281		0,430	
Total	D _α	0,112	Aceitar	0,113	Aceitar	0,130	Aceitar	0,201	Aceitar
	D _n	0,111		0,111		0,128		0,196	

D_α: valores críticos (tabelados); D_n: valores empíricos (calculados); H₀: hipótese nula (distribuição normal)

As Tabelas 10, 11, 12, 13 e 14, apresentam as matrizes de correlação existentes entre perfis e radionuclídeos (^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K), assim como, radionuclídeo por ponto analisado, respectivamente, cujos dados proporcionam investigar possível caracterização de anomalias de urânio, tório e/ou potássio, mobilidade desses radionuclídeos ou contaminação por correção de solos, irrigação ou atividades ambientais que possam promover disseminação desses elementos no ecossistema, ou até, caracterizar se os radionuclídeos são autóctones.

Em estatística descritiva, o coeficiente de correlação de Pearson é representado por ρ e mede o grau da correlação e a direção dessa correlação entre duas variáveis de escala métrica, se positiva ou negativa (assume apenas valores entre 1 e - 1), que em valores absolutos obedecem a seguinte escala: acima de 0,9 indica uma correlação muito forte; 0,7 a 0,9 indica uma correlação forte; 0,5 a 0,7 indica uma correlação moderada; 0,3 a 0,5 indica uma correlação fraca; 0 a 0,3 indica uma correlação desprezível. Quando aplicada ao ^{238}U , conforme visto na Tabela 10, observam-se correlações fortes para quase a totalidade dos perfis, mas apenas moderada nas relações entre o perfil P5 com os perfis P2 e P3.

Tabela 10 - Matriz de correlação para o urânio.

MATRIZ DE CORRELAÇÃO U-238					
PERFIL/PERFIL	P1	P2	P3	P4	P5
P1	1,0000	-----	-----	-----	-----
P2	0,8281	1,0000	-----	-----	-----
P3	0,8303	0,7620	1,0000	-----	-----
P4	0,8548	0,8984	0,7429	1,0000	-----
P5	0,7189	0,6467	0,5991	0,8540	1,0000

P1: profundidade de 0 até 10 cm; P2: profundidade de 10 até 20 cm; P3: profundidade de 20 até 30 cm; P4: profundidade de 30 até 40 cm; P5: profundidade de 40 até 60 cm.

Para o rádio, na Tabela 11, observa-se uma correlação muito forte na relação do perfil P5 com o perfil P4, mas também correlações fortes nas relações entre o perfil P1 com os perfis P3, P4 e P5 com o perfil P3 com os perfis P4 e P5, mas também correlações moderadas nas relações entre o perfil P1 com o perfil P2 e nas relações entre o perfil P2 com os perfis P3, P4 e P5, muito justificadas pelos resultados associados ao urânio, considerando ser descendente desse precursor.

Tabela 11 - Matriz de correlação para o rádio.

MATRIZ DE CORRELAÇÃO Ra-226					
PERFIL/PERFIL	P1	P2	P3	P4	P5
P1	1,0000	-----	-----	-----	-----
P2	0,6529	1,0000	-----	-----	-----
P3	0,8921	0,5988	1,0000	-----	-----
P4	0,8375	0,6754	0,8548	1,0000	-----
P5	0,7634	0,5939	0,8271	0,9315	1,0000

P1: profundidade de 0 até 10 cm; P2: profundidade de 10 até 20 cm; P3: profundidade de 20 até 30 cm; P4: profundidade de 30 até 40 cm; P5: profundidade de 40 até 60 cm.

Para o tório, na Tabela 12, já se observa alguma diferença no comportamento das correlações, com apenas uma correlação fraca na relação entre o perfil P1 e o perfil P5, e o restante das relações com correlações moderadas.

Tabela 12 - Matriz de correlação para o tório.

MATRIZ DE CORRELAÇÃO Th-232					
PERFIL/PERFIL	P1	P2	P3	P4	P5
P1	1,0000	-----	-----	-----	-----
P2	0,8837	1,0000	-----	-----	-----
P3	0,7010	0,8218	1,0000	-----	-----
P4	0,7713	0,8606	0,7762	1,0000	-----
P5	0,2640	0,3322	0,4806	0,6219	1,0000

P1: profundidade de 0 até 10 cm; P2: profundidade de 10 até 20 cm; P3: profundidade de 20 até 30 cm; P4: profundidade de 30 até 40 cm; P5: profundidade de 40 até 60 cm.

Para o caso do potássio, na Tabela 13, observa-se que as correlações são muito fortes nas relações entre o perfil P2 com os perfis P4 e P5, entre o perfil P3 com os perfis P4 e P5, e entre o perfil P4 com o perfil P5, e no restante das relações, observa-se uma correlação forte que caracterizam comportamentos idênticos para todos os perfis do solo e entre eles.

Tabela 13 - Matriz de correlação para o potássio.

MATRIZ DE CORRELAÇÃO K-40					
PERFIL/PERFIL	P1	P2	P3	P4	P5
P1	1,0000	-----	-----	-----	-----
P2	0,7224	1,0000	-----	-----	-----
P3	0,8185	0,8680	1,0000	-----	-----
P4	0,7532	0,9264	0,9294	1,0000	-----
P5	0,7684	0,9193	0,9377	0,9984	1,0000

P1: profundidade de 0 até 10 cm; P2: profundidade de 10 até 20 cm; P3: profundidade de 20 até 30 cm; P4: profundidade de 30 até 40 cm; P5: profundidade de 40 até 60 cm.

Na Tabela 14, apresenta a correlação entre todos os radionuclídeos estudados, onde foi constatado que o ^{40}K não apresenta nenhum nível significativo de correlação com os demais radionuclídeos, justamente por não pertencer a nenhuma das séries radioativas naturais e suas atividades serem bem diferenciadas, quando comparadas com os demais radionuclídeos.

Tabela 14 - Matriz de correlação por radionuclídeo e ponto de amostragem.

RN/RN - TOTAL	U-238	Ra-226	Th-232	K-40
U-238	1,0000	-----	-----	-----
Ra-226	0,7789	1,0000	-----	-----
Th-232	0,6403	0,5149	1,0000	-----
K-40	-0,0538	-0,0466	0,1289	1,0000

Como era de se esperar, ^{238}U e ^{226}Ra apresentam uma forte correlação, pois pertencem a mesma série natural e apresentam atividades radiométricas proporcionais, o que comprova que os teores, além de baixos, não estão sofrendo diferentes mobilidades e/ou acumulações ao longo da área.

Quanto ao tório, apresenta correlação moderada com o ^{238}U e com o ^{226}Ra . Já a correlação do potássio com os outros radionuclídeos foi caracterizada por uma correlação desprezível, provavelmente pelos minerais que compõem as rochas formadoras dos solos.

Quanto à mobilidade e retenção desses radionuclídeos, não foram observadas diferenças significativas entre perfis que possam comprovar essa relação de mobilidade, retenção e disponibilidade do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th .

De maneira geral, pelos resultados obtidos ao longo dos perfis dos solos analisados, não se pode caracterizar a princípio, a presença de anomalias de ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th no solo da região, uma vez que os resultados encontrados no referido estudo se assemelham a algumas regiões do planeta, conforme especificadas na Tabela 15, consideradas de baixa radiação de fundo, principalmente para alguns trabalhos relatados pela UNSCEAR (2000).

Tabela 15 - Atividade específica média do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em várias localidades.

LOCAL	ATIVIDADE (Bq/kg) – MÉDIA (INTERVALO)				
	U-238	Ra-226	Th-232	K-40	
Pernambuco	79 (16 - 288)	44 (2 - 192)	48 (1 - 282)	1.036 (5 - 2.601)	Neste estudo
Estados Unidos	35 (4 - 140)	40 (8 - 160)	35 (4 - 130)	370 (100 - 700)	Myrick (1983)
Japão	29 (2 - 59)	33 (6 - 68)	28 (2 - 88)	350 (15 - 990)	Megumi et al. (1988)
Irlanda	37 (8 - 120)	60 (10 - 200)	26 (3 - 60)	350 (40 - 800)	McAulay; Moran (1988)
Polônia	26 (5 - 120)	26 (5 - 120)	21 (4 - 77)	410 (110 - 970)	Jagielak et al. (1992)
China	33 (2 - 690)	32 (2 - 440)	41 (1 - 360)	440 (9 - 1.800)	Pan (1999)
Romênia	32 (8 - 60)	32 (8 - 60)	38 (11 - 75)	490 (250 - 1.100)	Tommasino (1999)
Suíça	40 (10 - 150)	40 (10 - 900)	25 (4 - 70)	370 (40 - 1.000)	UNSCEAR (2000)
Portugal	49 (26 - 82)	44 (8 - 65)	51 (22 - 100)	840 (220 - 1.230)	UNSCEAR (2000)
Tailândia	114 (3 - 370)	48 (11 - 78)	51 (7 - 120)	230 (7 - 712)	UNSCEAR (2000)
Mundial	35 (16 - 110)	35 (17 - 60)	30 (17 - 60)	400 (140 - 850)	UNSCEAR (2000)

6. CONCLUSÃO

Os resultados obtidos no presente projeto permitiram concluir que o solo da área analisada, em geral, não apresenta níveis de radioatividade natural fora dos padrões médios globais, caracterizando que essas áreas podem ser classificadas como de baixa radiação de fundo, principalmente em termos de urânio, rádio e tório.

O pequeno número de pontos com níveis diferenciados de potássio radioativo não configura anomalias radioativas e não impacta na caracterização radiométrica da região, tendo em vista que os resultados são poucos representativos para o contexto da pesquisa.

A coerência das atividades por perfil do solo mostra que, as atividades antrópicas da região não impactam no aumento das concentrações dos Materiais Radioativos de Ocorrência Natural (NORM), os quais não promovem TENORM, que são os Materiais Radioativos de Ocorrência Naturais Tecnicamente Aumentados.

Com esse estudo ficou caracterizado o perfil radiométrico da região por camadas de solo, cujas atividades específicas evidenciadas serão utilizadas como valores de referência para os radionuclídeos primordiais nos solos das microrregiões do Pajeú e Moxotó em Pernambuco.

O trabalho ressalta a necessidade de atribuir ao Programa de Monitoração Ambiental (PMA) as análises radiométricas e radioquímicas para os radionuclídeos terrestres e seus descendentes de maior importância nos estudos radioecológicos, uma maneira de caracterizar as matizes ambientais, acompanhar a evolução dos possíveis impactos ao ecossistema e garantir maior proteção dos seres vivos.

7. RECOMENDAÇÕES

Considerando a importância dos estudos radioecológicos, são recomendadas algumas ações que irão contribuir para maximizar o banco de dados e inferir com maior segurança, o perfil radioativo dessas áreas. Neste aspecto, são destacados como principais aqueles relacionados abaixo:

- (a) Expandir o estudo para todo estado de Pernambuco.
- (b) Inserir nas avaliações radioanalíticas outros radionuclídeos, como por exemplo: ^{222}Rn , ^{228}Ra e ^{210}Pb .
- (c) Realizar ensaios empíricos em outras matrizes ambientais como: rochas, água de consumo humano e alimentos.
- (d) Investir nos estudos de modelagem como alternativa da elaboração de um plano para caracterizar os radionuclídeos naturais, suas relações com o meio ambiente e o ser humano, assim como, realização da dosimetria radioecológica.
- (e) Promover condições para garantia do reconhecimento por parte dos órgãos de controle da necessidade de estabelecer critérios radioecológicos ambientais, o que deverá promover condições para uso de materiais, realização de atividades humanas e consumo de alimentos com maior segurança.

REFERÊNCIAS

- AJAYI, T. R.; TORTO, N.; TCHOKOSSA, P.; AKINLUA, A. **Natural Radioactivity and Trace Metals in Crude Oils: Implication for Health.** Environ Geochem Health, v. 31, p. 61-69, 2009.
- AMARAL, R. S. **Determinação de Urânio na Fosforita por Meio de Medidas Radiométricas e Análise por Ativação.** Dissertação (Mestrado em Ciências e Tecnologia Nuclear), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1987, 143 p.
- AMARAL, R. S. **Dose na População da Região Urano-Fosfática Pernambucana, devido à Presença de Urânio e ^{226}Ra nos Cultivares. 1994.** Tese (Doutorado em Ciências), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 1994, 109 p.
- AMARAL, R. S.; AMARAL, A. de J.; SILVA, E. ; VALENTIM, E. **Investigations of available uranium and Ra-226 in soils and vegetables in the phosphate area of Northeastern Brazil.** BfS-Schriften, SALZGITTER, GERMANY, v. 2, p. 19-21, 2002.
- AMARAL, R. S.; VASCONCELOS, W. E.; BORGES, E.; SILVEIRA, S. V.; MAZZILLI, B. P. **Intake of Uranium and Radium – 226 due to food crops consumption in the phosphate region of Pernambuco - Brazil.** Journal of Environmental Radioactivity, v.82, p. 383-398, 2005.
- ANJOS, R. M.; VEIGA, R.; SOARES, T.; SANTOS, A. M. A.; AGUIAR, J.G.; FRASCÁ, M. H. B. O.; BRAGE, J. A.P.; UZÊDA, D.; MANGIA, L.; FACURE, A.; MOSQUERA, B.; CARVALHO, C.; GOMES, P. R. S. **Natural radionuclide distribution in Brazilian commercial granites.** Radiation Measurements, v. 39, p. 245 – 253, 2005.
- AQUINO, F. S. **Urânio Natural na Dieta e no Leite do Bovino no Agreste Semiárido do Estado de Pernambuco.** Dissertação (Mestrado em Ciências), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2006, 66 p.
- AQUINO, K. A. S.; AQUINO, F. S. R. **Radioatividade e Meio Ambiente: os Átomos Instáveis da Natureza.** Coleção Química no Cotidiano. São Paulo | Sociedade Brasileira de Química. v. 8, 2012, p. 144.
- ARAÚJO, E. E. N. **Avaliação da Atividade do Rádio Equivalente na Matéria-Prima das Olarias do Sertão Paraibano.** Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014, p. 82.
- ARGENTIÈRE, R. **Urânio e tório no Brasil.** Introdução à Física Nuclear Aplicada. São Paulo, 1954, 555 p.
- AVWIRI, G. O.; ONONUGBO, C. P. **Natural Radioactivity Levels in Surface Soil of Ogba/Egbema/Ndoni Oil and Gas Fields.** Energy Science and Technology. v. 4, p. 92-101, 2012.
- AZEVEDO, F. A.; CHANSIN, A. A. M. **As Bases Toxicológicas da Ecotoxicologia.** Editora RIMA, 2004, p. 340.

BEZERRA, J. D. **Dosimetria Termoluminescente na Avaliação da Dose “Indoor” das Residências do Município de São José de Espinharas-PB.** Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014, p. 87.

BOLIVAR, J. P.; GARCÍA-TENORIO, R.; GARCÍA-LEÓN, M. **A method for the determination of counting efficiencies in γ -spectrometric measurements with HPGe detectors.** Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A. v. 382, p. 495-502, 1996.

BONOTTO, D. M. **Radioatividade e Saúde.** Geociências. (São Paulo), v.27, n.1, São Paulo, 2008.

BUNZL, K.; KRETNER, R.; SCHRAMMEL, P.; SZELES, M.; WINKLER, R. **Speciation of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb , ^{228}Ra , and stable Pb in the soil near exhaust ventilating shaft of an uranium mine.** Geoderma, v. 67, p. 45-53, 1995.

BUTLER, A.P., CHEN, J., AGÜERO, A., EDLUND, O., ELERT, M., KIRCHNER, G., RASKOB, W., SHEPPARD, M. **Performance assessment studies of models for water flow and radionuclide transport in vegetated soils using lysimeter data.** J Environ Radioactivity, v. 42, p. 271-288, 1999.

CANBERRA. **The system 100 user’s manual.** Version 3.0 [S.I.]: Canberra, Paginação irregular, 1990.

CARDOSO, G. V.; AMARAL SOBRINHO, N. M. B.; WASSERMAN, M. A. V.; MAZUR, N. **Geoquímica de Radionuclídeos Naturais em Solos de Áreas Circunvizinhas a uma Unidade de Mineração e Atividade de Urânio.** R. Bras. Ci. Solo, v. 33, p. 1909-1917, 2009.

CARDOSO, L. X. **Análise de Radionuclídeos Naturais e Artificiais do Solo e de Produtos Alimentícios no Estado de Sergipe, Principalmente na Região do Platô de Neópolis (SE).** Tese (Doutorado em Física) – Núcleo de Pós-Graduação em Física, Universidade Federal de Sergipe, São Cristóvão, 2012, p. 117.

CARLOS, D. U. **Desenvolvimento e construção de blocos de concreto radioativo para calibração de espectrômetros gama portáteis e aerotransportados, utilizados em exploração mineral e de hidrocarbonetos.** Dissertação (Mestrado em Ciências Geofísicas), Instituto de Astronomia Geofísica e Ciências Atmosféricas, Universidade de São Paulo, 2006. 92 p.

CHARFUELÁN, J. M. J. **Caracterização de Material Radioativo de Ocorrência Natural (Norm) no Município de São Mamede – Paraíba.** Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014, 78 p.

COOK, G.T.; MACKENZIE, A. B.; NAYSMITH, P.; ANDERSON, R. **Natural and Anthropogenic ^{14}C in the Uk Coastal Marine Environment.** Journal of Environmental Radioactivity, v. 40, p. 89-111, 1998.

- COSTA, M. C. A. **Determinação de radionuclídeos e estimativa da dose ao ar livre no município de Pocinhos - PB.** Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014, 70 p.
- COX, P.A. **The Elements: Their Origin, Abundance and Distribution.** Oxford University Press, Oxford, 1991.
- CUTHBERT, F. L. **Thorium production technology.** Reading, MA. Addison Wesley. 1958.
- DAVIS, P.A.; AVADHANULA, M.R.; CANCIO, D.; CARBONCRAS, P.; COUGHTREY, JOHANSSON, G.; LITTLE, R.H.; SMITH, G.M.; WATKINS, B.M. **BIOMOVs II: An international test of the performance of environmental transfer models.** J. Environ. Radioact., v. 42, p. 117-130, 1999.
- DESIDERI, D.; MELI, M. A.; FEDUZI, L.; ROSELLI, C.; RONGONI, A.; SAETTA, D. **^{228}U , ^{234}U , ^{226}Ra , ^{210}Po Concentrations of Bottled Mineral Waters in Italy and Their Dose Contribution.** Journal of Environmental Radioactivity. v.94, p. 86-97, 2007.
- DICKSON, B.L., SCOTT, K.M. **“Interpretation of Aerial Gamma-Ray Surveys -Adding the Geochemical Factors”**, AGSO Journal of Australian Geology and Geophysics, v. 17, p. 187-200, 1997.
- DNIT - Departamento Nacional de Infraestrutura de Transportes. Disponível em: <<http://www.dnit.gov.br/mapas-multimodais/mapas-multimodais>>. Acesso em: 15 out. 2014.
- DNPM - Departamento Nacional de Produção Mineral. **Mineração no Semiárido Brasileiro.** Brasília, 2009. 201 p.
- EDSFELDT, C. **The radium distribution in some Swedish soils and its effect on radon emanation.** Tese (Doutorado) – Division of Engineering Geology. Department of Civil and Environmental Engineering. Royal Institute of Technology, Stockholm, 2001.
- EISENBUD, M.; GESELL, T. **Environmental Radioactivity: from natural, industrial, and military sources.** New York: Academic Press, 1997. 656 p.
- EISENBUD, M. **Environmental Radioactivity.** 3.ed. New York, Academic Press, 1987
- EGGEBERT-SEELMANN, W.; PFENNIG, G.; MUNZEL, H. **Nuklidkarte: Chart of the nuclides.** 4 ed. Auflage: Institut für Radiochemie, 1974, 28 p.
- EL-ARABI, A.M. **^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K concentrations in igneous rocks from eastern desert, Egypt and its radiological implications.** Radiation Measurements. v. 42, p. 94-100, 2007.
- EMBRAPA. Centro Nacional de Pesquisa de Solos. **Levantamento de Reconhecimento de Baixa e Média Intensidade dos Solos do Estado de Pernambuco.** Boletim de Pesquisa, N° 11, Rio de Janeiro, 2000.

EMBRAPA. Centro Nacional de Pesquisa de Solos. **Sistema Brasileiro de Classificação de Solos**. 2 ed. Rio de Janeiro, 2006.

EMBRAPA. Centro Nacional de Pesquisa de Solos. **Manual de análises químicas de solos, plantas e fertilizantes**. 2 ed. rev. ampl. - Brasília, DF, 2009, 627 p.

FERREIRA, M. D. C. **Estudo da eficiência de um detector HPGe por métodos semiempíricos e experimental**. Programa de Pós-graduação em Ciências e Tecnologias das Radiações, Minerais e Materiais. Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear. Belo Horizonte, 2012.

FIRESTONE, R. B.; SHIRLEY, V. S.; CHU, S. Y. F.; BAGLIN, C. M. ZIPKIN, J. **Table of isotopes**. U.S.: Wiley-Interscience. Versão 1.0, CD ROM, v. 14, p. 193, 1996.

FORTESCUE, J. A. C. **Landscape geochemistry: retrospect and prospect - 1990**. Applied Geochemistry, v. 7, p. 1-53, 1992.

FUJINAMI, N.; KOGA, T.; MORISHIMA, H. **External Exposure Rates from Terrestrial Radiation at Guarapari and Meaibe in Brazil**, 10^o International Congress of the International Radiation Protection Association (IRPA), Hiroshima (Japão), p. 14-19, 2000.

GARCÊZ, R. W. D. **Determinação das Atividades Específicas de ²²⁶Ra, ²²⁸Ra e ⁴⁰K em Amostras de Fertilizantes Minerai**s. Dissertação (Mestrado em Programa de Energia Nuclear), Universidade Federal do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2016, 67 p.

GHIASSI-NEJAD, M.; MORTAZAVI, S. M. J. CAMERON, J. R.; NIROOMAND-RAD, A., KARAM, P. A. **Very High Background Radiation Areas of Ramsar, Iran: Preliminary Biological Studies**. Health Physics Society, v.82, p. 87-93, 2002.

GILL, R. **Chemical Fundamentals of Geology**. 2 ed. Chapman & Hall, 1996, p. 299.

GOMES, L. F. **Uso de um misturador-decantador na purificação de tório proveniente do hidróxido de tório bruto**. Dissertação (Mestrado em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear - Departamento de Química da FFCLRP - USP), 2004. 113 p.

GONZÁLEZ-CHORNET G.E; GONZÁLEZ-LABAJO J. **Natural Radioactivity in Beach Sands From Doñana National Park and Mazagón (Spain)**. Radiation Protection Dosimetry. v.2, p. 307-310, 2004.

GRAINGER, L. **Uranium and thorium**. London: George Newnes, 1958.

GREEMAN, D. J.; ROSE, A. W. **Factors controlling the emanation of radon and thoron in soils of the Eastern United States**. Chemical Geology, n^o 129, p. 1-14, 1996.

GREEMAN, D. J.; ROSE, A. W.; WASHINGTON, J. W.; DOBOS, R. R.; CIOLKOSZ, E. J. **Geochemistry of radium in soils of the Eastern United States**. Applied Geochemistry, n^o 14, p. 365-385, 1999.

GUERRA, A.T. **Dicionário Geológico – Geomorfológico**. Fundação IBGE, 3ª edição, 1990.

HUHN, A. **Programa de Proteção Radiológica em um Serviço Hospitalar de Radiologia**. Dissertação (Mestrado em Pós-Graduação em Enfermagem), Centro de Saúde e Ciências, Universidade Federal de Santa Catarina, Florianópolis, 2014, 146 p.

INSTITUTO DE ASSESSORIA PARA O DESENVOLVIMENTO HUMANO (IADH). **Plano Territorial de Desenvolvimento Rural Sustentável do Sertão do Pajeú**. Ministério do Desenvolvimento Agrário, Brasil, 2011.

INDÚSTRIA NUCLEAR BRASILEIRA (INB). Disponível em: <http://www.inb.gov.br/Contato/Perguntas-Frequentes/Pergunta/Conteudo/o-que-e-uranio?Origem=305> Acesso em: 27/01/17.

INSTITUTO DE FÍSICA DA USP (IFUSP) – **Raios Cósmicos**. Departamento de Física Nuclear. Disponível em: < <http://portal.if.usp.br/fnc/pt-br/p%C3%A1gina-de-livro/raios-c%C3%B3smicos>>. Acesso em: 12/01/2017.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). **Measurements of radionuclides in food and environ**. Technical Reports Series 295, Vienna, 1989.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). **Airborne gamma ray spectrometer surveying**. Technical Reports Series 323, Vienna, 1991.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION (ICRP). **Limits for intakes of radionuclides by workers. Part I**. Pergamum Press, Oxford, 1978.

IYENGAR, M. A. R. **The natural distribution of radium. In: The environmental behavior of radium**. Vienna: International Atomic Energy Agency, Vienna, p. 59-128, 1990.

KAPLAN, I. **Física Nuclear**. 2 ed. Rio de Janeiro: Guanabara Dois, 1978.

KETCHAM, R. A. **An improved method for determination of heat production with gamma-ray scintillation spectrometry**. Chemical Geology, 130, p.175-194, 1996.

KITTO, M. E.; PAREKH, P. P.; TORRES, M. A.; SCHNEIDER, D. **Radionuclide and Chemical Concentrations in Mineral Waters at Saratoga Springs**, New York. Journal of Environmental Radioactivity, v. 80, p. 327-339, 2005.

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and Measurement**. New York: John Wiley & Sons, New York, p. 754, 2000.

KRAUSKOPF, K. B. **Introdução à Geoquímica**, EDUSP, São Paulo, p. 197-214, 1972.

LANGMUIR, D. **Uranium Solution-Mineral Equilibria at Low Temperatures with Applications to Sedimentary Ore Deposits**. Geochemical Cosmochemical Acta, v. 42, p. 547-569, 1978.

- LANHAM-NEW, S. A.; LAMBERT, H. **Potassium**. *Journal Nutrition*, v. 3, p. 820-821, 2012.
- LAURIA, D. C.; MARTINS, N. S. F.; ZENARO, R. **Monitoração Ambiental. Instituto de Radioproteção e Dosimetria**. Rio de Janeiro, Outubro, 2003.
- LIDE, D. R. **Handbook of Chemistry and Physics**. CRC Press, 86 ed., 2005.
- LIMA, R. A. **Avaliação da Dose na População da Região Urano-Fosfática do Nordeste que Utiliza os Recursos Hídricos da Região**. Tese (Doutorado em Ciências), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 1996, 187 p.
- LIMA, A. A. M. **As Radiações no Ensino Básico e Secundário**. Dissertação (Mestrado em Mestrado em Ensino da Física e da Química), Departamento de Física da Universidade de Coimbra, Faculdade de Ciência e Tecnologia da Universidade de Coimbra, 2007, 208 p.
- MALANCA, A.; PESSINA, V.; DALLARA, G.; LUCE, C. N.; GAIDOLFI, L. **Natural Radioactivity in Building Materials from the Brazilian State of Espírito Santo**. *Applied Radiation and Isotopes*. v. 12, p. 1387-1392, 1995.
- MAYS, C. W.; ROWLAND, R. E.; STEHNEY, A. **Cancer risk from the lifetime intake of Ra and U isotopes**. *Health Physics*, v. 48, n. 5, p. 635-647, 1985.
- MAZZILLI, B. P.; SILVA, P. S. C.; NISTI, M. B. **Enhancement of natural radioactivity in the surrounding of a phosphate fertilizer complex in Santos basin, Brazil**. IN: *Radioprotection Colloques*, França, v.37, n. CI, p. 795-799, 2002.
- MAZZILLI, B. P.; MÁDUAR, M. F.; CAMPOS, M. P. **Radioatividade no Meio Ambiente e Avaliação de Impacto Radiológico Ambiental**. Documento TNA – 5754, IPEN – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2011, 92 p.
- MCAULAY, I. R.; D. MORAN. **Natural radioactivity in soil in the Republic of Ireland**. *Radiat. Prot. Dosim.*, p. 47-49, 1988.
- MELO, N. M. P. **Avaliação da Dose Interna Devida ao ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{210}Pb nos Suprimentos de Água para Abastecimento Público da Região Metropolitana do Recife**. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2008, p. 121.
- MCBRIDE, M. B. **Environmental Chemistry of Soils**. New York: Oxford University Press, p. 406, 1994.
- MILVY, P.; COTHERN, C.R. **Naturally occurring radionuclides in drinking water: An exercise in risk benefit analysis**. *Environmental Geochemistry and health*. v.11, n.2, p. 63-72, 1989.

MOLINARI, J. **The chemistry and radiochemistry of radium and the other elements of the uranium and thorium natural decay series.** In: IAEA INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. The environmental behaviour of radium, v. 1. Technical Reports Series, n° 310. 1990, p. 11-58.

MORAIS, E. N. L. **Dose de radiação ambiental em área habitada na região urano-fostática de Pernambuco.** Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2013, p. 82

NUCLEBRAS. **Mapa Aerogamaespectrométrico do Brasil.** Relatório de Fase do Departamento de Geologia, Empresa Nucleares Brasileiras S/A, 1984.

OLIVEIRA JÚNIOR, O. P.; BOLLE, W.; RICHETER, S.; MUNOZ, A. A.; KUHN, H.; SARKIS, J. E. S.; WELLUM, R. **Evaluation of the $n(^{235}\text{U})/n(^{238}\text{U})$ Isotope Ratio Measurements in a Set of Uranium Samples Thermal of Mass Spectrometry,** International Journal of Mass Spectrometry, v. 246, p. 35-42, 2005.

OLIVEIRA, D. S. **Um estudo sobre o desequilíbrio radioativo da série do urânio em amostras do solo.** Dissertação (Mestrado em Ciências em Geofísica Nuclear), Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas da Universidade de São Paulo, 2006, p. 79.

OLIVEIRA, K. A. P. **Aplicação do fosfogesso na agricultura do Cerrado e suas implicações radiológicas.** Dissertação (Mestrado em Ciência e Tecnologia das Radiações, Minerais e Materiais), Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, Belo Horizonte, 2008, p. 125.

OLIVEIRA, M. F. **A Rica Polêmica sobre o Urânio Empobrecido.** Ciência Hoje, p. 37, 2007.

PAIVA, **Estudo da Mobilidade e Dispersão de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Ra e Metais Pesados no Sistema Solo-Rocha do Depósito de U e TR de São José de Espinharas (PB).** Tese (Doutorado em Geociências), Centro de Tecnologia e Geociências, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2008, 149 p.

PASCHOA, A.S. **More than forty years of studies of natural radioactivity in Brazil. Technology,** v. 7, p. 193–212, 2000.

PERNAMBUCO. “Governo do Estado: Geografia de Pernambuco”. Disponível em: <http://www.pe.gov.br/conheca/geografia/>. Acesso em: 27/01/2017.

PRADO, G. R. **Estudo de Contaminação Ambiental por Urânio no Município de Caetité-Ba, Utilizando Dentes de Humanos como Bioindicadores.** Dissertação (Mestrado em Desenvolvimento Regional e Meio Ambiente), Universidade Estadual de Santa Cruz – UESC, Ilhéus-BA, 2007, p. 178.

REBELO, A. M. A.; BITTENCOUT, A. V. L.; MANTOVANI, L. E. **Anomalias geoquímicas de U e de Th, solos residuais e geofomas em paisagens tropicais úmidas sobre granito.** Boletim Paranaense de Geociências, v. 51, p. 33-44, 2002.

REZENDE, N. G. A. M. **O fosfato de Olinda e os conflitos da mineração. Série Recursos Minerais.** v. 3. Recife: CPRM, p. 19, 1994.

SANTOS, D. S.; NASCIMENTO, C. T. C.; BERNARDI, J. V. E. **Espectrometria de raios gama em metassedimentos e rochas gnáissicas na região de Cavalcante, Goiás.** Anais XVI Simpósio Brasileiro de Sensoriamento Remoto - SBSR, Foz do Iguaçu, PR, Brasil, 13 a 18 de abril de 2013, INPE, 2013.

SANTOS, R. N.; MARQUES, L. S.; BRENHA-RIBEIRO, F. **Estudo do Equilíbrio Radioativo das Séries do ^{238}U e ^{232}Th em Rochas Vulcânicas das Ilhas da Trindade e de Martin Vaz.** Geochimica Brasiliensis. v. 14, p. 135-153, 2000.

SANTOS JÚNIOR, J. A. **Migração de Urânio e Rádio-226 no Solo em Torno da Ocorrência Uranífera do Município de Pedra - PE. 2005.** Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2005, 89 p.

SANTOS JÚNIOR, J. A. **Avaliação Radiométrica do U-238, Ra-226, Th-232 e K-40 em uma Área Anômala do Agreste de Pernambuco.** Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2009, 139 p.

SANTOS JÚNIOR, J. A. S.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; BEZERRA, J. D. **Estudo Comparativo entre os Detectores HPGe e NaI(Tl) na Determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em Amostras de Solo.** Scientia Plena, v. 5, n. 4, p. 16, 2009.

SANTOS JÚNIOR, J. A. S.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C. **Radium Equivalent and Annual Effective Dose from Geological Samples from Pedra – Pernambuco - Brazil.** Radiation Measurements, v. 5, n. 45, p. 861-864, 2010.

SCHEIBEL, V. **Determinação das doses efetivas por ingestão de farinhas de cereais através da espectrometria de raios gama, 2006.** Tese (Doutorado em Física) – Departamento de Física, Universidade Estadual de Londrina, Londrina, 2006, 159 p.

SCHULZ, R. K. **Soil Chemistry of Radionuclides.** Health Physics. v. 11, p. 1317-1324, 1965.

SILVA, C. M.; AMARAL, R. S.; LIMA, R. de A.; OLIVEIRA, G. H S F. de; VASCONCELOS, W. E. **Urânio e polônio em água de abastecimento público da região metropolitana do Recife.** Revista Brasileira de Recursos Hídricos, Porto Alegre, RS, v. 8, n. 4, p. 149-155, 2003.

SILVA, A. A. **Dosimetria Radioecológica na Ocorrência Uranífera de São José de Espinharas-PB. 2014.** Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014a, 66 p.

SILVA, F. F. **Dosimetria Ambiental de uma Área Uranífera do Município de São José de Espinharas-PB.** Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares) – Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014b, p. 148.

SILVA, P. S. C. **Caracterização Química e Radiológica dos Sedimentos do Estuário De Santos, São Vicente e Baía de Santos. 2004.** Tese (Doutorado em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear - Aplicações) – Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares - IPEN/CNEN, São Paulo, 2004, 265 p.

SILVEIRA, P. B.; GENEZINI, F. A.; HONORATO, E. V.; HAZIN, C. A.; FARIA, E. E.; BELO, M. T.; LIRA, M. **Natural radionuclides in grapes and wine of the Valley of São Francisco-PE.** In: International Nuclear Conference ISBN: 978-8599141-02-01, 2007.

TRIOLA, M. F. **Introdução à Estatística.** 7 ed., Rio de Janeiro: LTC, 1999, 410 p.

TURNER, J. E. **Atoms, Radiation, and Radiation Protection.** 3 ed., John Wiley & Sons, 2007, 573 p.

TZORTZIS, M.; TSERTOS, H. **Determination of thorium, uranium and potassium elemental concentrations in surface soils in Cyprus.** Journal of Environmental Radioactivity. v. 77, p. 325-338, 2004.

UNSCEAR (United Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiations). **Ionizing Radiation: Sources And Biological Effects,** New York, 1982.

UNSCEAR (United Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiations). **Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations,** New York, 1993.

UNSCEAR (United Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiations). **Exposures from natural radiation sources.** New York, USA, 2000.

VASCONCELLOS, R. M.; METELO, M. J.; MOTA, A. C. M.; GOMES, R. D. **Geofísica em Levantamentos Geológicos no Brasil,** CPRM, Serviço Geológico do Brasil, Rio de Janeiro, 1994, 165 p.

VASCONCELOS, D.C. **Estudo da radioatividade natural em areias de praias do extremo sul da Bahia utilizando métodos de análises nucleares.** Tese (Doutorado em Ciências e Técnicas Nucleares), Programa de Pós-graduação em Ciências e Técnicas Nucleares da Universidade Federal de Minas Gerais. Belo Horizonte, 2010, 213 p.

VEIGA, R.; SANCHES, N.; ANJOS, R. M.; MACARIO, K.; BASTOS, J.; IGUATEMY, M.; AGUIAR, J. G.; SANTOS, A. M. A.; MOSQUERA, B.; CARVALHO, C.; BAPTISTA FILHO, M.; UMISEDIO, N. K. **Measurement of natural radioactivity in Brazilian beach sands.** Radiation Measurements, p. 189-196, 2006.