

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS
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**

DÉRIC SOARES DO AMARAL

**RADÔNIO-222 E RADIONUCLÍDEOS ASSOCIADOS EM ÁGUAS DE POÇOS E
SOLOS EM ÁREAS DO FOSFORITO URANÍFERO DA REGIÃO
METROPOLITANA DO RECIFE**

Recife

2018

DÉRIC SOARES DO AMARAL

**RADÔNIO-222 E RADIONUCLÍDEOS ASSOCIADOS EM ÁGUAS DE POÇOS E
SOLOS EM ÁREAS DO FOSFORITO URANÍFERO DA REGIÃO
METROPOLITANA DO RECIFE**

Dissertação submetida ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares do Departamento de Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco como parte dos requisitos para obtenção do título de Mestre em Tecnologias Energéticas e Nucleares.

Área de Concentração: Aplicações de Radioisótopos na Agricultura e Meio Ambiente.

Orientador: Prof. Dr. Elvis Joacir De França

Coorientador: Prof. Dr. João Adauto de Souza Neto

Recife

2018

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

- A485r Amaral, Déric Soares do.
Radônio-222 e radionuclídeos associados em águas de poços e solos em áreas do fosforito uranífero da região metropolitana do Recife. / Déric Soares do Amaral. - Recife: O Autor, 2018.
85 f. : il., tabs.
- Orientador: Prof. Dr. Elvis Joacir de França.
Coorientador: Prof. Dr. João Adaauto de Souza Neto.
- Dissertação (mestrado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, 2018.
Inclui referências.
1. Radônio. 2. Ocorrência uranífera. 3. Radionuclídeos naturais. 4. Proteção radiológica. I. França, Elvis Joacir de, orientador. II. Souza Neto, João Adaauto de, coorientador. III. Título.

Radônio-222 e Radionuclídeos Associados em Água de Poços e Solos em Áreas do Fosforito Uranífero da Região Metropolitana do Recife

Déric Soares do Amaral

APROVADA EM: 20.02.2018

ORIENTADOR: Prof. Dr. Elvis Joacir de França

CO-ORIENTADOR: Prof. Dr. João Adauto de Souza Neto

COMISSÃO EXAMINADORA:

Prof. Dr. André Maciel Netto – DEN/UFPE

Prof. Dr. Ebenézer Moreno de Souza – CRCN-NE/CNEN

Prof. Dr. Emerson Emiliano Gualberto de Farias – CRCN-NE/CNEN

Visto e permitida a impressão

Coordenador(a) do PROTEN/DEN/UFPE

A Deus, pai-criador, aos meus pais Éric Amaral e Juracéa Soares,
à minha irmã Louise Amaral e a minha companheira Laís Pedrosa.

Dedico

AGRADECIMENTOS

Primeiramente a Deus, Senhor de todas as coisas, que me propiciou saúde, força de vontade e sabedoria.

À minha família, em especial aos meus pais, Éric Amaral e Juracéa Soares, e à minha irmã Louise Amaral, e à minha companheira Laís Pedrosa, pelo apoio incondicional, paciência e todo incentivo dados nos tantos momentos difíceis ao longo desta caminhada.

Ao meu orientador Prof. Dr. Elvis Joacir De França, e ao meu co-orientador, Prof. Dr. João Adauto de Souza Neto, por toda disponibilidade para a orientação deste trabalho, contribuindo de todas as maneiras possíveis para a elucidação de dúvidas e resoluções de problemas que se apresentaram ao longo de sua realização.

Ao Serviço de Monitoração Ambiental (SEAMB) do Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste (CRCN/NE), por disponibilizar toda sua estrutura laboratorial e corpo técnico para a realização deste trabalho.

Aos amigos de pós-graduação, Emerson de Farias, Mariana Santos, Crescêncio Silva Filho, Paulo Silva Neto, Fabiano Ferreira, Marcelo Magalhães, Luiz Joaquim, Marcelo Belmiro, por todo auxílio seja nos trabalhos de campo, nas análises laboratoriais, ou mesmo com contribuições intelectuais para o aprimoramento do trabalho.

Especial agradecimento ao amigo de pós-graduação e pai de coração Iram Alves de Moura, por todo companheirismo e incentivo ao longo dessa difícil caminhada.

Ao corpo discente do Departamento de Energia Nuclear da UFPE (DEN/UFPE) por sua contribuição na construção de minha base de conhecimento necessária para o feitiço deste estudo.

A todos aqueles que contribuíram para o aperfeiçoamento deste trabalho participando das bancas de avaliação de 1º e 2º Seminário de Dissertação, bem como da banca de avaliação da Defesa da Dissertação: Dra. Cláudia Poggi, Dr. Frederico de Menezes, Dr. Emerson de Farias, Dra. Márcia Miranda, Dr. Clayton Benevides, Dr. André Maciel Netto e Dr. Ebenézer de Souza.

Às secretárias da Pós-Graduação do DEN/UFPE Kalidja e Nilvânia e seu assistente Adelmo, que sempre estavam prontos para ajudar a resolver os problemas burocráticos.

À Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior (CAPES) pelo auxílio financeiro para o desenvolvimento das atividades de pesquisa.

A todos os meus amigos e familiares, que estão sempre presentes e torcendo pelo meu sucesso.

A todos, muito obrigado!

RESUMO

A Região Metropolitana do Recife (RMR), Pernambuco, Brasil, encontra-se na área de ocorrência em sub-superfície do fosforito uranífero. Esta rocha sedimentar está associada a arenitos calcíferos com distribuição descontínua e espessura variando de centímetros a metros. Em alguns bairros dos municípios de Paulista e de Abreu e Lima, existem depósitos do fosforito uranífero localizados próximos a superfície de interesse para a proteção radiológica. Dentre os radionuclídeos naturais, destaca-se o radônio-222, cujo decaimento origina uma série de nuclídeos emissores alfas de meia-vida curta. A ingestão e inalação de altas quantidades de radônio representam elevado risco, pois a inalação é considerada uma das maiores causas de desenvolvimento de câncer de pulmão no ser humano. Com a clara necessidade de monitoração ambiental na RMR, foram quantificados Rn-222 e nuclídeos associados em águas de cacimbas e solos circunvizinhos em regiões de ocorrência do fosforito uranífero da RMR. A Espectrometria de Cintilação Líquida foi empregada para a determinação de Rn-222 e Ra-226 em águas de cacimbas da região, enquanto que a quantificação das concentrações de atividade de Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos foi realizada pela Espectrometria Gama de Alta Resolução. Taxas de exalação superficial de Rn-222 foram estimadas com auxílio de detector AlphaGuard. A partir desses resultados, a exposição à radiação ionizante da população, a dose e os riscos à saúde foram estudados nesse trabalho. Para as águas de poços, foi detectado risco à saúde da população quanto às altas concentrações de atividade de Rn-222 e Ra-226. O uso dos solos do Município de Abreu e Lima deve ser limitado, principalmente para a construção de casas, devido à presença de Ra-226 em concentrações apreciáveis e aos altos valores de taxa de exalação superficial. É evidente a necessidade de monitoração de Rn-222 em diversos compartimentos, incluindo no interior das residências, para minimizar a exposição da população à radiação ionizante.

Palavras-chave: Radônio, Ocorrência uranífera, Radionuclídeos naturais, Proteção radiológica.

ABSTRACT

The Metropolitan Region of Recife (RMR), Pernambuco, Brazil, is within the area of occurrence of subsurface uraniferous phosphorite. This sedimentary rock is associated to sandy limestones with discontinuous distribution and thickness ranging from centimeters to meters. In some neighborhoods from the Municipalities of Paulista and Abreu e Lima, there are uraniferous phosphorite deposits close to the surface of interest for radiological protection. Among the natural radionuclides, radon-222 is utmost important due to the production of a series of short half-life alpha-emitting nuclides during its decay. The ingestion and inhalation of high amounts of radon represents a high risk, since inhalation has been considered one of the main causes of lung cancer development in humans. With the clear necessity of environmental monitoring in the RMR, Rn-222 and associated nuclides were quantified in the well water and its surrounding soils from the RMR's uraniferous phosphorite occurrence region. Liquid Scintillation Spectrometry was applied for determining the Rn-222 and Ra-226 concentrations in well water, while the quantification of Ra-226, Ra-228 and K-40 activity concentrations in the soils was carried out by High Resolution Gamma Spectrometry. Rn-222 surface exhalation rates were estimated by means of AlphaGuard detector. With these results, exposure of population to ionizing radiation, dose and health risks were studied in this work. For the well waters, risk to the human health was detected due to the high Rn-222 and Ra-226 concentrations. The soil uses of the Abreu e Lima municipality should be limited, mainly for the house constructions, due to the presence of Ra-226 in appreciable concentrations and the high values of superficial exhalation rate. It is clear the necessity of the monitoring of Rn-222 in diverse compartments, including indoor radon, in order to minimize the population exposure to ionizing radiation.

Keywords: Radon; Uraniferous occurrence, Natural radionuclides, Radiological protection.

LISTA DE ILUSTRAÇÕES

Figura 1 - Contribuição de diversas fontes para a exposição humana à radiação ionizante.....	24
Figura 2 - Série radioativa do Urânio	26
Figura 3 - Série radioativa do Actínio	27
Figura 4 - Série radioativa do Tório	27
Figura 5 - Contribuição das diversas fontes para a exposição humana à radiação	34
Figura 6 - Localização da Bacia Sedimentar da Paraíba.....	36
Figura 7 - Fosforito uranífero encontrado por Souza (2006) em Paulista, Pernambuco, utilizando cintilômetro portátil	37
Figura 8 - Distribuição dos depósitos de fosforito uranífero na região de estudo	38
Figura 9 - Localização dos bairros estudados da Região Metropolitana do Recife, Pernambuco, Brazil.....	39
Figura 10 - Cintilômetro SAPHYMO modelo SRAT-SPP/2 para o levantamento radiométrico da área de estudo	40
Figura 11 - Transecto Norte-Sul do Bairro do Fosfato, Município de Abreu e Lima, para escolha da área de estudo.....	41
Figura 12 - Transecto Leste-Oeste do Bairro de Paratibe, Município do Paulista, para escolha da área de estudo.....	41
Figura 13 - Transecto Norte-Sul do Bairro do Paratibe, Município do Paulista, para escolha da área de estudo.....	42
Figura 14 - Transecto Norte-Sul do Bairro de Pau Amarelo, Município do Paulista, para escolha da área de estudo.....	42
Figura 15 - Localização das unidades amostrais no bairro do Fosfato, Abreu e Lima ...	43
Figura 16 - Localização das unidades amostrais no Bairro de Paratibe, Paulista	44
Figura 17 - Localização das unidades amostrais no Bairro de Pau Amarelo, Paulista ...	45
Figura 18 - Vials utilizados contendo o coquetel cintilador e amostras de águas de poços	46
Figura 19 - Espectrômetro de Cintilação Líquida, Quantulus 1220, da Perkin Elmer. ..	47
Figura 20 - Espectrômetro de Fluorescência de Raios-X por Energia Dispersiva.	51
Figura 21 - Sistema de detecção utilizando a câmara RadonBOX para a determinação da taxa de exalação superficial de Rn-222 em campo	53
Figura 22 - Sistema EGAR com detector HPGe utilizado para a determinação de radionuclídeos naturais.....	55

Figura 23 - Curva de crescimento da atividade do Rn-222	57
Figura 24 - Agrupamentos das variáveis a partir da Análise por Componentes Principais	66
Figura 25 - Agrupamentos dos solos a partir da Análise por Componentes Principais. AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe. Números indicam as diferentes amostras analisadas em cada bairro.	67
Figura 26 - Curvas utilizadas para os cálculos das taxas de exalação de Rn-222 de cada solo estudado. AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe.....	68

LISTA DE TABELAS

Tabela 1 - Fator de qualidade Q para diferentes radiações	22
Tabela 2 - Escala de tempo para efeitos causados pela radiação ionizante.....	22
Tabela 3 - Principais radionuclídeos primordiais	25
Tabela 4 - Coordenadas geográficas das unidades amostrais. AL = Abreu e Lima. PB = Paratibe. PA = Pau Amarelo	45
Tabela 5 - Consumo de água por faixa etária.	49
Tabela 6 - Condições analíticas para a quantificação de elementos químicos por EDXRF.	52
Tabela 7 - Valores obtidos e de referência para o controle da qualidade do procedimento analítico para a determinação de Rn-222 e Ra-226 em água	58
Tabela 8 - Resultados das análises por CLUBR nas amostras de águas de poços da Região do Fosforito Uranífero da RMR.....	59
Tabela 9 – Comparação entre os valores de concentração de atividade de Rn-222 encontrados nas regiões estudadas e os encontrados na literatura para outros locais no Brasil.....	60
Tabela 10 - Dose efetiva anual associada à ingestão de radônio na água no Bairro do Fosfato, Município de Abreu e Lima	62
Tabela 11 - Dose efetiva anual associada à ingestão de radônio na água no Bairro de Pau Amarelo, Município do Paulista.....	62
Tabela 12 - Dose efetiva anual associada à ingestão de radônio na água no Bairro de Paratibe, Município do Paulista	63
Tabela 13 - Concentrações dos elementos químicos e suas respectivas incertezas analíticas expandidas (95%) determinadas nos materiais de referência certificados e os valores obtidos do Número E_n	64
Tabela 14 - Concentração dos elementos químicos (mg kg^{-1}) dos solos estudados.....	65
Tabela 15 - Taxas de exalação de superfície de Rn-222 do solo dos locais de estudo. AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe.....	69
Tabela 16 - Comparação entre valores de taxa de exalação de Rn-222 da região estudada e valores da literatura.....	70
Tabela 17 - Valores obtidos e certificados e suas respectivas incertezas expandidas em nível de 95% de confiança para os radionuclídeos naturais quantificados no padrão de solo do PNI/IRD e no material de referência IAEA 314	71

Tabela 18 - Concentrações de atividade e incertezas analíticas expandidas em nível de 95% de confiança dos radionuclídeos estudados nos solos.....	72
Tabela 19 - Valores de equivalente de rádio (R_{eq}), índices gama (I_γ) e alfa (I_α) e suas respectivas incertezas analíticas em nível de 95% de confiança nos solos estudados.	73
Tabela 20 - Valores de taxa de dose absorvida gama (D), dose efetiva anual (E) e suas respectivas incertezas analíticas expandidas (95%) utilizados para análise dos riscos associados ao Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos estudados.....	75

LISTA DE ABREVIATURAS E SIGLAS

ASTM	<i>American Society for Testing and Materials</i>
Atm	Atmosfera
Bq	Becquerel
C	Celsius
CLUBR	Cintilação Líquida de Ultrabaixo Nível de Radiação de Fundo
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
Com	Contagens por minuto
Cps	Contagens por segundo
CRCN-NE	Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste
DEN/UFPE	Departamento de Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco
DNA	Ácido desoxirribonucleico
EDXRF	Fluorescência de Raios-X por Energia Dispersiva
EGAR	Espectrometria Gama de Alta Resolução
eV	Elétron-volt
FWHM	Largura à meia altura do fotopico
G	Grama
GPS	<i>Global Positioning System</i>
Gy	Gray
HPGe	<i>High Purity Germanium</i>
IAEA	<i>International Atomic Energy Agency</i>
IARC	<i>International Agency for Research on Cancer</i>
ICRP	<i>International Commission on Radiological Protection</i>
IRD	Instituto de Radioproteção e Dosimetria
J	Joule
L	Litro
LET	<i>Linear Energy Transfer</i>
LSC	Contador de Cintilação Líquida
M	Metro
MG	Minas Gerais
Min	Minuto
NCRP	<i>National Council on Radiological Protection and Measurements</i>
NIST	<i>National Institute of Standard and Technology</i>
NRPB	<i>National Radiological Protection Board</i>
Pa	Pascal
PB	Paraíba

PCA	Análise por Componentes Principais
PE	Pernambuco
PNI	Programa Nacional de Intercomparação
PR	Paraná
PSA	<i>Pulse Shape Analyzer</i>
RMR	Região Metropolitana do Recife
RS	Rio Grande do Sul
S	Segundo
SEAMB	Serviço de Monitoração Ambiental
SI	Sistema Internacional de Medidas
SP	São Paulo
Sv	Sievert
UNSCEAR	<i>United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation</i>
USEPA	<i>United States Environmental Protection Agency</i>
V	Volt

SUMÁRIO

1.	INTRODUÇÃO	17
2.	REVISÃO DE LITERATURA	19
2.1	Radioatividade.....	19
2.2	Atividade radioativa e unidades	20
2.3	Dosimetria.....	21
2.3.1	Efeitos biológicos da radiação ionizante	21
2.4	Radioatividade natural	23
2.5	Séries radioativas	25
2.6	Radônio	28
2.6.1	Propriedades físico-químicas do radônio	29
2.6.2	Radônio em águas do subsolo	29
2.6.3	Radônio no solo	31
2.6.4	Radônio em ambientes internos (indoor)	32
2.7	Radônio e a saúde humana.....	33
2.8	O Fosforito Uranífero da RMR	35
3.	MATERIAL E MÉTODOS.....	39
3.1	Áreas de estudo.....	39
3.2	Levantamentos radiométricos da região de estudo	40
3.3	Escolha das unidades amostrais	43
3.4	Determinações em águas de poços.....	46
3.4.1	Coleta e preparação das amostras.....	46
3.4.2	Concentração de atividade de Rn-222	47
3.4.2.1	Riscos associados à ingestão de Rn-222.....	49
3.4.3	Concentração de atividade de Ra-226.....	50
3.5	Determinações no solo	50
3.5.1	Coleta e preparação das amostras.....	50
3.5.2	Caracterização química dos solos.....	51
3.5.3	Taxa de exalação superficial de Rn-222 no solo.....	52
3.5.4	Concentração de atividade de radionuclídeos naturais	54
3.5.4.1	Riscos associados à presença de Ra-226, Ra-228 e K-40 no solo	55
3.6	Avaliação da qualidade do procedimento analítico	56

4.	RESULTADOS E DISCUSSÃO	57
4.1	Radionuclídeos nas águas de poços	57
4.1.1	Curva de crescimento do Rn-222 e cálculo da eficiência	57
4.1.2	Controle da qualidade do procedimento analítico.....	58
4.1.3	Concentrações de Rn-222 e Ra-226.....	59
4.1.4	Riscos associados à ingestão de Rn-222 na água.....	61
4.2	Caracterização química e radiométrica dos solos.....	63
4.2.1	Caracterização química.....	63
4.2.1.1	Garantia da qualidade do procedimento analítico.....	63
4.2.1.2	Elementos químicos nos solos	65
4.2.2	Taxa de exalação superficial do Rn-222	68
4.2.3	Radionuclídeos naturais nos solos	70
4.2.3.1	Garantia da qualidade do procedimento analítico.....	71
4.2.3.2	Níveis de Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos	71
4.2.3.3	Riscos associados ao Ra-226, Ra-228 e K-40 no solo.....	73
5.	CONCLUSÕES	76
6	PERSPECTIVAS PARA TRABALHOS FUTUROS.....	77
	REFERÊNCIAS	78

1. INTRODUÇÃO

A Região Metropolitana do Recife - RMR, Pernambuco, Brasil, encontra-se na área de ocorrência do fosforito uranífero (SOUZA, 2006). Essa rocha está associada a uma camada geológica contendo arenitos calcíferos, cujas principais características são sua distribuição descontínua e espessura variando de centímetros a metros. Dessa forma, existem depósitos em menor profundidade em regiões urbanizadas nos Municípios de Paulista e Abreu e Lima (SOUZA, 2006) de grande interesse para a proteção radiológica devido à presença de radionuclídeos naturais no fosforito.

Esses radioisótopos, principalmente o radônio, são responsáveis por aproximadamente 70% da exposição do homem à radiação ionizante segundo a *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation* (UNSCEAR, 2010). Dentre os isótopos radioativos desse gás, o Rn-222 é o radionuclídeo mais persistente (meia-vida de 3,8 dias), sendo de extrema importância quando se refere à radioproteção. Pertencente à série de decaimento do U-238 e proveniente do decaimento do Ra-226, o Rn-222 sofre decaimento por emissão de partícula alfa e dá origem a uma série de radionuclídeos de meia-vida curta, que também são emissores alfa (Po-218 e Po-214). Os radionuclídeos filhos Po-218 e Po-214 estão relacionados com o risco de desenvolvimento de câncer de pulmão associados ao radônio com 3% a 14% dos óbitos (ELMAGD et al., 2008; WHO, 2009a; 2011).

Uma das formas mais simples de exposição ao radônio é a ingestão de água com alta concentração de atividade deste radionuclídeo. Por isso, em depósitos de águas subterrâneas presentes em regiões de ocorrências uraníferas, as águas poderão ser enriquecidas, necessitando de investigação detalhada (WISSER, 2003; SANTOS, 2010a). A ingestão de águas com altos teores de radônio acarreta o aumento da dose recebida pela população, sendo o tecido das paredes do estômago o mais atingido pela radiação (ICRP, 1999; NAVARANJAN et al., 2016). Além disso, estudos epidemiológicos com trabalhadores de minas de urânio apontaram um maior risco de desenvolvimento não só de câncer de pulmão, como também em outros órgãos como o estômago, os rins e a medula relacionados à inalação do radônio (SCHUBAUER-BERIGAN et al., 2009; NAVARANJAN et al., 2016).

Radônio é principalmente incorporado ao organismo humano por meio da inalação e ingestão de água e a sua alta concentração no ar está interligada à sua difusão no solo, principalmente nas regiões de ocorrência uranífera, em que há grande potencial de disseminação deste gás. Por isso, é de extrema relevância para a saúde pública a medição da concentração de atividade deste gás na água de poços e no solo de regiões densamente

habitadas. Isto porque as construções nestas regiões podem possuir elevadas concentrações de radônio, especialmente em ambientes fechados sem uma grande quantidade de ar circulante para dispersá-lo (GERALDO et al., 2005; USEPA, 2016).

Como a inalação de Rn-222 é uma das principais causas de câncer de pulmão (WHO, 2009b; KIM et al., 2016), estudos vêm sendo realizados em vários países para gerar estimativas e parâmetros de medições e monitoração da exposição populacional a este gás e aos radionuclídeos originários de seu decaimento radioativo, além de estimar a dose e os riscos resultantes do consumo de águas. Como é evidente a necessidade de levantamentos sobre os impactos radioecológicos na RMR, este estudo buscou investigar os níveis de Rn-222 e radionuclídeos associados (Ra-226 e Ra-228) em águas de cacimbas e solos circunvizinhos em áreas de ocorrência do fosforito uranífero da RMR para avaliar possíveis riscos associados à presença desses nuclídeos nessas regiões. Como objetivos específicos, foram quantificados os radionuclídeos de grande relevância para a proteção radiológica Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos e foram determinadas as taxas de exalação do Rn-222 de modo a estudar a contribuição desse radionuclídeo para a exposição da população. Para a avaliação mais detalhada dos riscos associados à saúde dos habitantes dessas áreas, as principais estimativas relacionadas com a dose recebida pela população devido à presença desses radionuclídeos na água e no solo foram estudadas neste trabalho.

2 REVISÃO DE LITERATURA

2.1 Radioatividade

Descoberta em fevereiro de 1896 por Antoine Henri Becquerel (FONSECA, 1992; TURNER, 2007), a radioatividade pode ser definida como “a atividade que determinados átomos possuem de emitir radiações eletromagnéticas e partículas de seus núcleos instáveis com o propósito de adquirir estabilidade” (FONSECA, 1992, p. 255). O núcleo de um átomo de número atômico Z e número de massa A é constituído por Z prótons e $N = A - Z$ nêutrons, sendo A o número total de núcleons (isto é, prótons e nêutrons) no núcleo. Uma espécie de átomo, caracterizada por sua constituição nuclear - seus valores de Z e A (ou N) - é chamado de nuclídeo. São conhecidos atualmente mais de 3.000 nuclídeos, sendo apenas 10 % deles estáveis. A estabilidade diminui à medida que a razão entre a quantidade de nêutrons e prótons presentes nos nuclídeos aumenta (FONSECA, 1992; TURNER, 2007; MAFRA, 2009).

As emissões de partículas alfa (α), beta (β) e raios gama (γ) foram reconhecidas e descritas por Rutherford em 1897. As partículas alfa ocorrem geralmente a partir de núcleos pesados e são caracterizadas pela emissão de um ou mais grupos de partículas monoenergéticas, de energia discreta e definida. A partícula alfa é composta por dois prótons e dois nêutrons, sendo, portanto, um núcleo de hélio (${}^4_2\text{He}$), mais pesado e de maior carga com relação às partículas beta e raios gama (HALLIDAY et al., 2004; TURNER, 2007; MAFRA, 2009). Na emissão de partículas beta, um núcleo emite simultaneamente um elétron (${}^0_{-1}\beta$), ou pósitron (${}^0_{+1}\beta$) - partícula de mesma massa do elétron e carga positiva - e um antineutrino (${}^0_0\bar{\nu}$) ou neutrino (${}^0_0\nu$). Ambas as partículas são criadas no momento do decaimento radioativo. O antineutrino, bem como sua antipartícula, o neutrino, não tem carga e pouca ou nenhuma massa, tendo sido detectados apenas em experimentos bastante elaborados. Considerando o poder de penetração, as partículas betas são leves com relação às partículas alfa e, por isso, possuem maior poder de penetração (TURNER, 2007; MAFRA, 2009). A emissão de radiação gama ocorre quando um núcleo excitado libera um ou mais fótons, podendo ocorrer várias liberações em sequência até o núcleo se estabilizar. Desta forma, o núcleo que passa para um estado de menor energia, mas mantém o número de prótons e de massa, são chamados isômeros. A radiação gama não possui carga, nem massa (segundo a luz da física clássica), e tem alto poder de penetração, dependendo do seu

comprimento de onda, sendo bastante danosa à matéria orgânica, além de percorrer grandes distâncias no ar (HALLIDAY et al., 2004; TURNER, 2007; MAFRA, 2009).

Para estimar possíveis danos causados ao organismo humano e tomar medidas de proteção que possam diminuir estes riscos (TURNER, 2007), a quantificação das radiações ionizantes é necessária, pois também proporciona indicadores essenciais para a avaliação das consequências radiológicas da exposição.

2.2 Atividade radioativa e unidades

“Atividade é descrita como o número de átomos de um radionuclídeo que se desintegra por unidade de tempo” (TURNER, 2007, p. 83). A unidade de atividade do Sistema Internacional (SI) é o becquerel (Bq), definido como uma desintegração por segundo ($1 \text{ Bq} = 1 \text{ desintegração s}^{-1}$). A atividade (A) de um radionuclídeo puro diminui exponencialmente com o tempo. Sendo N o número de átomos deste radionuclídeo numa amostra num dado momento, uma vez que a variação deste número de átomos é negativa com o tempo, define-se $\left(-\frac{dN}{dt}\right)$ como a taxa de decaimento radioativo, ou seja, a atividade do radionuclídeo. Sendo λ a constante da proporcionalidade, A é dada pela Equação 1:

$$A = -\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (1)$$

A constante λ é chamada constante de decaimento e é inversamente proporcional ao tempo de meia vida ($t_{1/2}$), sendo essa constante descrita pela Equação 2:

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{t_{1/2}} \quad (2)$$

A atividade também pode ser descrita em função do tempo como na Equação 3, na qual se considera A_0 como a atividade no tempo inicial ($t = 0$):

$$A = A_0 e^{-\lambda t} \quad (3)$$

A atividade também é utilizada no cálculo dos limites de exposição do ser humano à radiação ionizante e no estudo dos efeitos diretos e indiretos da radiação sobre o organismo

humano, estimando os danos causados e como podem ser evitados e mitigados (TURNER, 2007).

2.3 Dosimetria

A Dosimetria das Radiações Ionizantes relaciona quantitativamente medidas específicas da radiação com alterações físicas, químicas e/ou biológicas passíveis de ocorrência em um determinado alvo. É essencial para quantificar a incidência de várias alterações biológicas em função da quantidade de radiação recebida (relações dose-efeito), possibilitando a comparação de diferentes experimentos, a monitoração da exposição à radiação de indivíduos e a vigilância do ambiente (TURNER, 2007).

A principal grandeza física utilizada na dosimetria é a dose absorvida, comumente chamada apenas por dose. É definida como a energia absorvida por unidade de massa de qualquer tipo de radiação ionizante em qualquer alvo. Sua unidade atual J kg^{-1} , é chamada de Gray - Gy (TURNER, 2007). Ao conhecer a dose absorvida pelo organismo, é de suma importância estudar os efeitos biológicos decorrentes da radiação absorvida (USEPA, 1999).

2.3.1 Efeitos biológicos da radiação ionizante

Os efeitos biológicos da radiação ionizante sobre as células do nosso organismo podem ser resultados da ação direta e indireta desta radiação. Efeitos diretos são produzidos pela ação inicial da própria radiação, enquanto os efeitos indiretos são causados pela ação química posterior dos radicais livres e outros produtos de radiação (RODRIGUES, 2011; OKUNO, 2013; DESOUKY et al., 2015). Um exemplo de efeito direto é a ruptura da cadeia no DNA causada por uma ionização na própria molécula. Um exemplo de efeito indireto é a quebra desta mesma cadeia que ocorre quando um radical $OH\cdot$, produzido pela interação da radiação com a água presente no organismo, ataca, posteriormente, o DNA (TURNER, 2007).

Esses efeitos podem variar dependendo da dose, do tipo de radiação e do local do organismo atingido. Uma radiação com uma alta Transferência Linear de Energia - LET é, geralmente, mais prejudicial ao sistema biológico por unidade de dose do que uma radiação de baixa LET. Para melhor estimativa dos danos que diferentes tipos de radiação podem causar, foi introduzido pela *International Commission on Radiological Protection* (ICRP) e pelo *National Council on Radiation Protection and Measurements* (NCRP) o conceito de dose equivalente (H). A dose equivalente é definida pelo produto da dose absorvida (D) por

um fator de qualidade adimensional (Q) que depende do LET da radiação (TURNER, 2007). Na Tabela 1 estão apresentados os valores de Q definidos pela ICRP e pelo NCRP para diferentes tipos de radiação.

Tabela 1 - Fator de qualidade Q para diferentes radiações

L (keV μm^{-1} em água)	Q
<10	1
10-100	0,32 L - 2,2
>100	$300/\sqrt{L}$

L = transferência linear de energia

Fonte: Adaptado de Turner (2007).

Diferentes tecidos do corpo respondem de forma diferente à radiação, cuja probabilidade de efeitos biológicos resultantes de uma determinada dose equivalente dependerá do tecido ou órgão específico irradiado. Para melhor conhecimento dessas probabilidades de ocorrência dos efeitos biológicos, a ICRP e a NCRP também atribuíram fatores de ponderação para os diferentes tecidos (W_T), dos quais os fatores para gônadas são os de maior valor ($W_T = 0,2$), seguidos pelos fatores ($W_T = 0,12$) para medula óssea, cólon, pulmão e estômago, pelos fatores ($W_T = 0,05$) para bexiga, mamas, fígado, esôfago e tireóide, e, por fim, aqueles definidos para a pele e para os ossos ($W_T = 0,01$) (TURNER, 2007).

Os efeitos ocorrem rapidamente, enquanto outros podem levar anos para se tornarem evidentes (TURNER, 2007). Na Tabela 2 está apresentada a escala de tempo para que alguns efeitos biológicos importantes causados pela radiação ionizante sejam observados.

Tabela 2 - Escala de tempo para efeitos causados pela radiação ionizante

Tempo	Efeitos biológicos
$\leq 10^{-3}$ s	Reações dos radicais produzidos pela radiação com as moléculas biológicas estão completas
≤ 1 s	Alterações bioquímicas
Minutos	Divisão celular afetada
Dias	Alterações no sistema nervoso central e no sistema digestivo
Semanas	Desenvolvimento de fibrose pulmonar
Anos	Ocorrência de catarata e câncer; efeitos genéticos sobre os descendentes

Fonte: Adaptado de Turner (2007).

É possível dividir os efeitos biológicos da radiação em estocásticos e determinísticos. Os efeitos estocásticos não possuem relação de causa e efeito bem definida, ou seja, com o aumento da dose recebida por um indivíduo, não necessariamente o efeito seria agravado. O desenvolvimento de câncer devido à exposição à radiação é um exemplo de efeito estocástico, pois quando uma grande população é exposta a uma quantidade significativa de radiação, uma incidência elevada de câncer é esperada, todavia não necessariamente casos mais graves ocorrerão em decorrência do aumento da dose recebida pela população (TURNER, 2007; OKUNO, 2013; DESOUKY et al., 2015). Por outro lado, os efeitos determinísticos mostram uma relação clara entre dose e efeito em um dado indivíduo. Em geral, existe uma dose mínima, também chamada limiar de dose, abaixo do qual nenhum efeito é observado em curto prazo. Além disso, a gravidade do efeito aumenta com a dose. Queimadura na pele é exemplo de um efeito determinístico da radiação (TURNER, 2007; OKUNO, 2013; DESOUKY et al., 2015).

Mesmo com o grande impacto das doses referentes a explosões e testes nucleares, a contribuição dos radionuclídeos naturais para os efeitos estocásticos vem sendo cada vez mais estudada, principalmente em áreas anômalas como é o caso da região do fosforito uranífero da RMR.

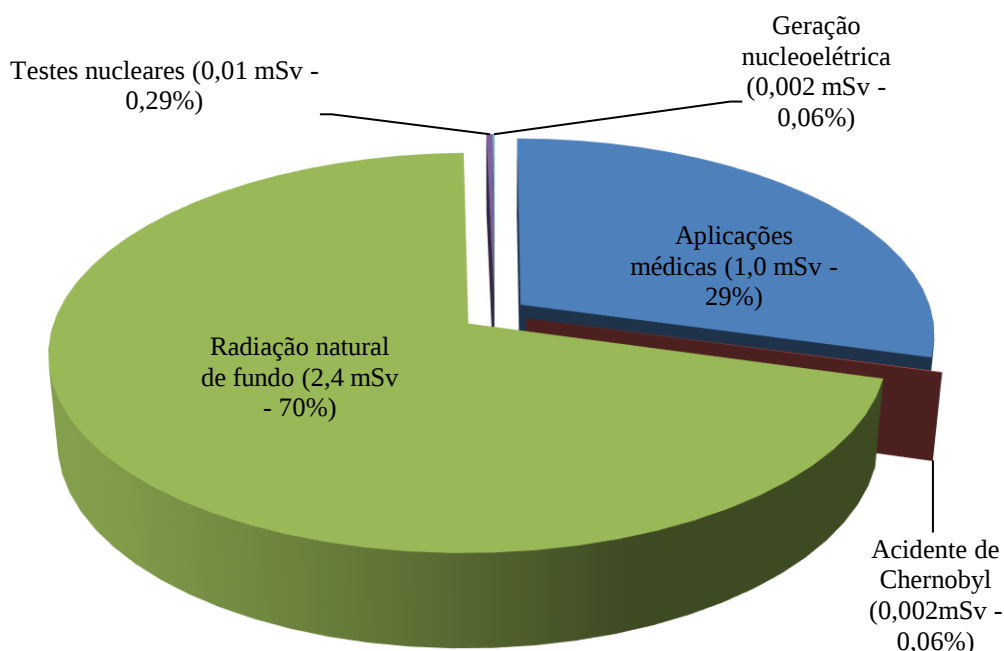
2.4 Radioatividade natural

Grande parte da radiação recebida pelo homem é devida às chamadas fontes terrestres, cujos radionuclídeos naturais são encontrados no ar, na água, em plantas, em alimentos, em materiais de construção e no corpo humano (MELQUIADES; MELQUIADES, 2004; NADALETI et al., 2016). Excetuando-se as fontes artificiais, que são responsáveis por apenas 30 % da radiação à qual os seres humanos estão expostos, as fontes naturais são responsáveis pelos 70 % restantes como mostra a Figura 1 (UNSCEAR, 2010). A taxa de dose efetiva global atribuída à radiação natural é estimada em 2,4 mSv ano⁻¹ pela Comissão Nacional de Energia Nuclear – CNEN (2005).

Os níveis de radioatividade terrestre ao redor do nosso planeta variam dependendo da concentração dos radionuclídeos naturais nas rochas, solo, água e alimentos da região, parâmetros que também possuem elevada variabilidade nas diversas regiões do globo terrestre. Os tipos de rochas presentes no local interferem na concentração de atividade dos radionuclídeos e, conseqüentemente, nos níveis de radioatividade terrestre. Em geral, a presença de rochas ígneas está associada a altos níveis de radiação terrestre, enquanto baixos

níveis de radiação estão relacionados a rochas sedimentares (GRAVES, 1987; SANTOS, 2010a; ROZAS et al., 2016).

Figura 1 - Contribuição de diversas fontes para a exposição humana à radiação ionizante



Fonte: Modificado de UNSCEAR (2010).

Os radionuclídeos terrestres presentes desde a origem do universo também são conhecidos como radionuclídeos primordiais (BONOTTO, 2004) com meias-vidas compatíveis com a idade da Terra ($4,5 \times 10^9$ anos). Aqueles com meias-vidas consideravelmente menores já deram origem a outros nuclídeos de acordo com seus respectivos decaimentos radioativos (BONOTTO, 2004; SANTOS, 2010a). A Tabela 3 apresenta alguns dos principais radionuclídeos naturais, dos quais merecem destaque U-238, U-235 e Th-232, que dão origem às três séries de decaimento radioativo. Outros radioisótopos primordiais não pertencentes às séries, mas de relevância do ponto de vista da proteção radiológica, são K-40 e Rb-87 (Tabela 3).

O potássio, elemento essencial ao organismo humano, ocorre naturalmente na forma de três isótopos (K-38, K-39 e K-40), sendo K-40 o único radioativo. Este radionuclídeo é ingerido em conjunto com os outros isótopos do potássio e é responsável por uma dose de cerca de $180 \mu\text{Sv ano}^{-1}$ ao ser humano (UNSCEAR, 2000). Rb-87 pertence à mesma família

química do potássio na tabela periódica, tendo, portanto, propriedades químicas semelhantes. Desta forma, é facilmente incorporado ao organismo humano no lugar do potássio, contribuindo para o aumento da exposição do ser humano à radiação ionizante (SANTOS, 2010a).

Tabela 3 – Principais radionuclídeos primordiais

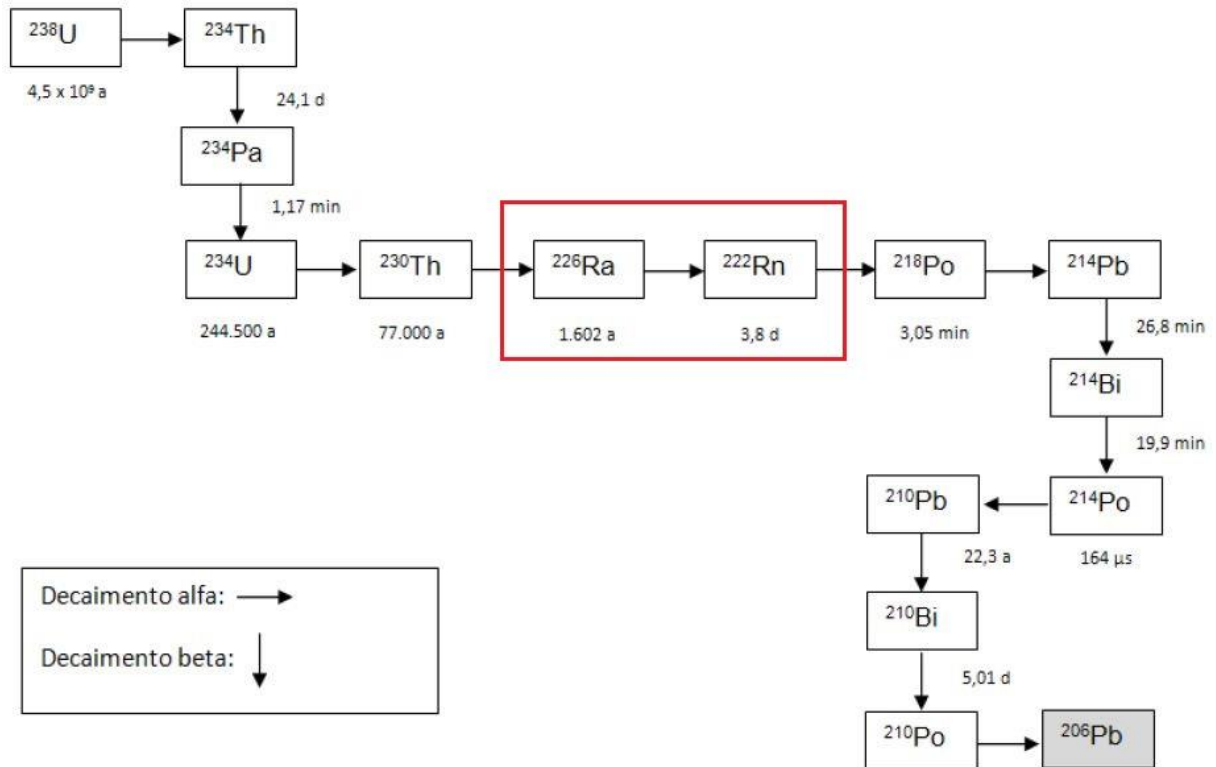
Radionuclídeo	Meia-vida (anos)
U-238	$4,5 \times 10^9$
U-235	$7,1 \times 10^8$
Th-232	$1,4 \times 10^{10}$
K-40	$1,26 \times 10^9$
Rb-87	$4,8 \times 10^{10}$
In-115	$6,0 \times 10^{14}$
Tc-113	$1,2 \times 10^{13}$
Lu-113	$2,2 \times 10^{10}$
Ta-180	$> 1,5 \times 10^{12}$
Sm-147	$1,05 \times 10^{11}$
V-50	$6,0 \times 10^{15}$
La-130	$1,12 \times 10^{11}$

Fonte: UNSCEAR (2000).

2.5 Séries radioativas

A série do Urânio (Figura 2), também chamada série $4n + 2$, contém 15 radionuclídeos (8 emissores alfa e 6 emissores beta). É a série radioativa com maior importância quanto à proteção radiológica devido à presença de alguns radionuclídeos como o Ra-226. Esse radionuclídeo possui meia-vida de 1.602 anos, emite radiação alfa com 4,78 MeV de energia, e gera outro radionuclídeo de elevada relevância quanto à radioproteção, que é o Rn-222. O Rn-222, por sua vez, é um gás praticamente inerte à temperatura ambiente e possui meia-vida de 3,8 dias, cerca de três ordens de grandeza maior do que as meias-vidas dos outros isótopos do radônio (Rn-219 e Rn-220). Além disso, emite radiação alfa com energia de 16,32 MeV e dá origem aos nuclídeos de meia-vida curta Po-218, Pb-214, Bi-214 e Po-214 (TURNER, 2007).

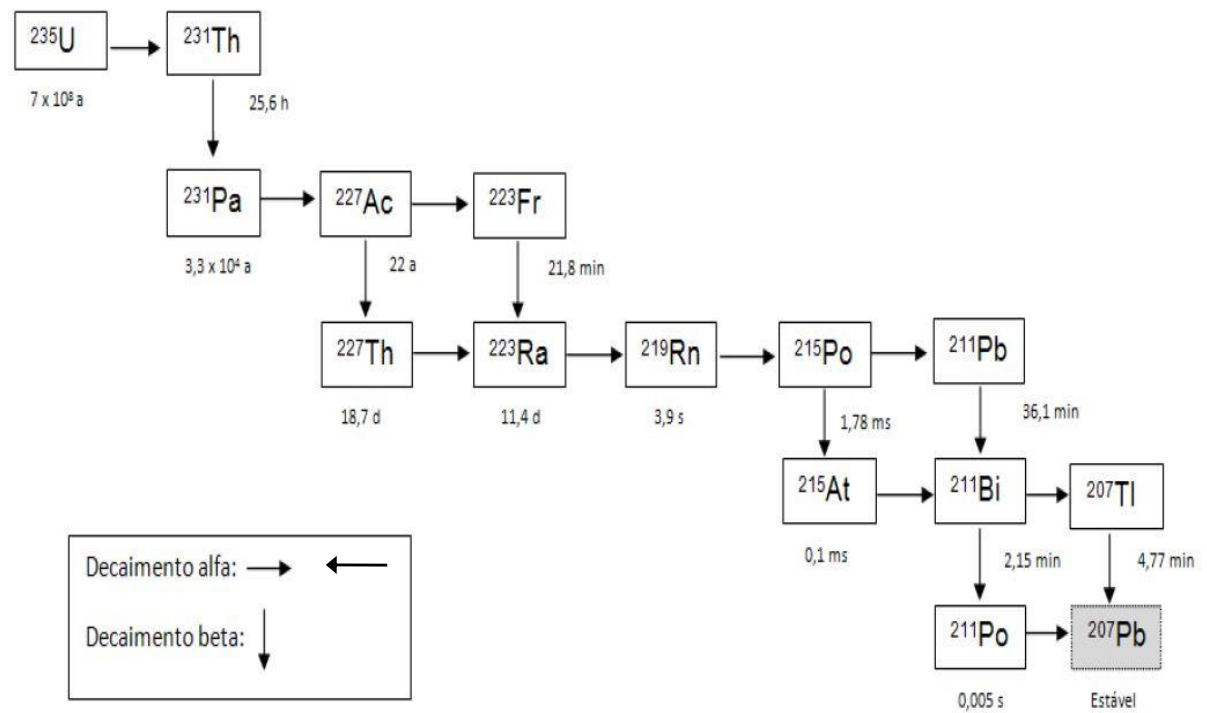
Figura 2 - Série radioativa do Urânio



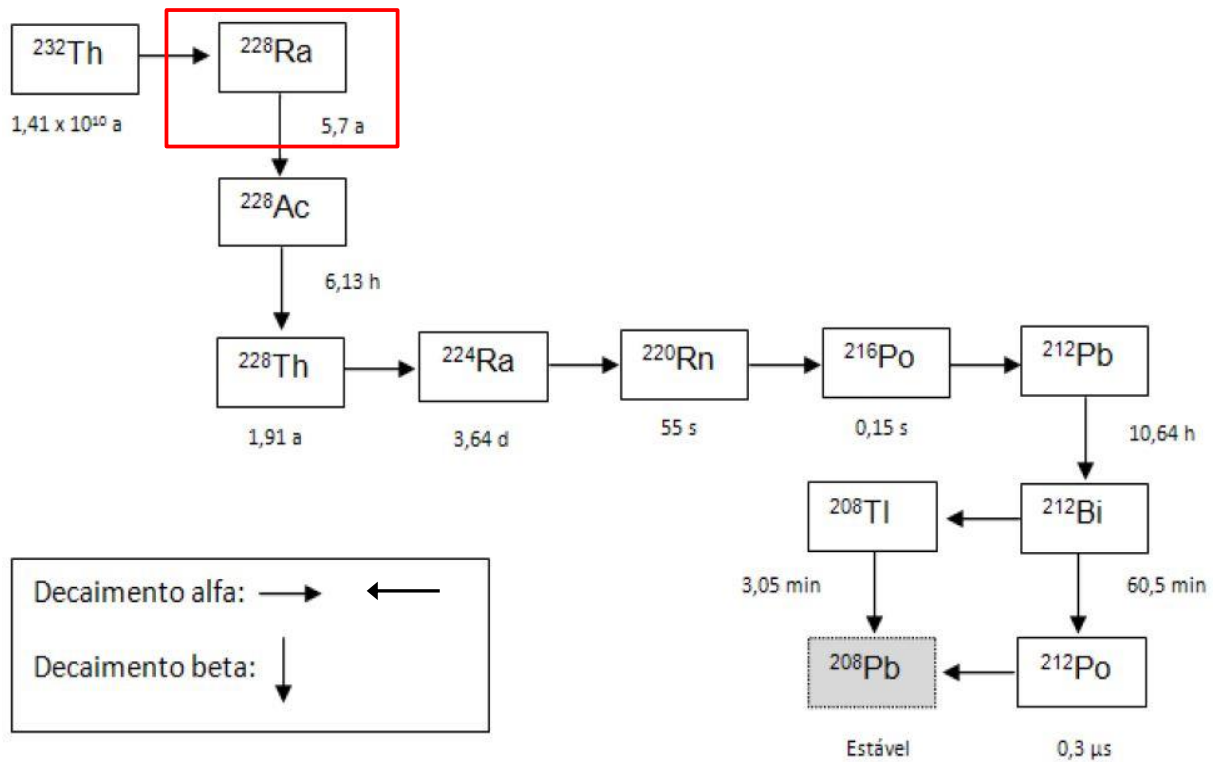
Fonte: Adaptado de Santos (2010a).

A série do Actínio (Figura 3), também conhecida como série $4n + 3$, tem como precursor o U-235, cuja meia-vida é $7,1 \times 10^8$ anos. Os radionuclídeos presentes nesta série possuem baixa abundância isotópica natural e, portanto, pouca relevância quanto à proteção radiológica (TURNER, 2007).

A série do Tório (Figura 4), cujo precursor é Th-232 ($t_{1/2} = 1,4 \times 10^{10}$ anos), é composta por 12 radioisótopos, dos quais se destaca Ra-228, emissor beta de meia-vida longa (5,7 anos). Também está presente nesta série um radioisótopo gasoso do radônio, Rn-220. Sua meia-vida de apenas 55 segundos o torna capaz de migrar distâncias menores desde a sua formação quando comparado ao Rn-222, sendo, portanto, de menor relevância para a proteção radiológica. Porém, por ser um emissor alfa e dar origem a outro emissor alfa de meia-vida curta (Po-216), os níveis de Rn-220 no solo e em ambientes fechados também merecem alguma atenção, especialmente em áreas com altas concentrações de Th-232 e Ra-228 no solo. (TURNER, 2007).

Figura 3 - Série radioativa do Actínio

Fonte: Adaptado de Santos (2010a).

Figura 4 - Série radioativa do Tório

Fonte: Santos (2010a).

2.6 Radônio

Radônio foi identificado como elemento químico em 1900, por Friedrich Ernst Dorn, a partir da observação da formação de um gás radioativo a partir de sais de tório. Por este motivo, o radônio foi inicialmente chamado de “emanação do rádio”. Gray e Ramsay propuseram denominá-lo “niton”, da palavra latina *nitens* que significa brilhante, por causa do seu brilho ao ser condensado (WILKENING, 1990; FARIAS, 2016). Radônio é um elemento químico que, nas condições normais de temperatura e pressão, apresenta-se no estado gasoso e é encontrado em rochas cristalinas e sedimentares, solos, minérios e dissolvido na água. Rn possui três isótopos radioativos naturais:

- ✓ Torônio (Rn-220) é pertencente à Série do Tório com meia-vida de 55 s;
- ✓ Actinônio (Rn-219) pertence à série do actínio com meia-vida de 3,92 s,
- ✓ Radônio (Rn-222) é o radioisótopo mais persistente (meia vida de 3,8 dias) e, portanto, mais importante quanto à radioproteção (CORRÊA, 2006; MAFRA, 2009; UNSCEAR, 2010).

Na atmosfera, o radônio tende a se difundir e se acumular nas camadas mais baixas, próximo à superfície, uma vez que é um elemento químico de elevado peso atômico (PETTA; CAMPOS, 2013). Ao ar livre, não se apresenta como ameaça à saúde pública, porém em ambientes fechados e mal ventilados, tais como cavernas, túneis e residências com pouca circulação de ar, pode alcançar altos valores de concentração. Sua abundância é preocupante em áreas com ocorrências uraníferas, pois altíssimas concentrações de atividade podem ser encontradas (WISSER, 2003; MAFRA, 2009; FIANCO, 2011; KIM et al., 2016).

Por ser um gás nobre e, portanto, praticamente inerte, o radônio não participa de processos químicos como precipitação e complexação em meio aquoso, sendo possível o seu livre transporte das rochas para a água. Variáveis físicas, como temperatura e pressão, além das características geoquímicas do seu antecessor, são responsáveis pelo controle da concentração de Rn-222 na água. Esse radioisótopo pode ser encontrado dissolvido em águas subterrâneas, como águas de poços artesianos, que são usadas pela população em diversas atividades rotineiras e para o consumo, levando à inalação e à ingestão do gás. Em águas superficiais, como rios, lagos e reservatórios, suas concentrações não são tão preocupantes, pois o gás provavelmente será liberando durante o transporte até as residências (USEPA, 1999; SANTOS, 2010a; FIANCO, 2011).

2.6.1 Propriedades físico-químicas do radônio

Atualmente, são conhecidos 38 isótopos do radônio, sendo 3 deles naturais e 35 sintéticos. Rn-222 dá origem a outros emissores de partículas alfa, cuja energia das partículas liberadas pelos produtos de decaimento do radônio, em especial Po-218 e Po-214, depositadas nas células do epitélio respiratório, é considerada fator indutor do câncer de pulmão (CORRÊA, 2006; ELMAGD et al., 2008; SANTOS, 2010a; TORRES-DURÁN et al., 2014; VOGIANNIS; NIKOLOPOULOS, 2015)

O radônio é um elemento químico de número atômico 86, massa atômica 222,0176 unidades de massa atômica, que é inodoro, insípido e incolor no estado gasoso, mas apresenta-se brilhante-fosforescente quando congelado, indo do amarelo ao vermelho alaranjado à medida que vai descongelando. Seus respectivos pontos de fusão e de ebulição são -71°C e $-61,8^{\circ}\text{C}$, apresentando-se no estado gasoso à temperatura ambiente. Possui densidade de $9,73\text{ g dm}^{-3}$ no estado gasoso. Por ser um gás nobre, não é capaz de formar compostos, porém pode ser facilmente adsorvido por substâncias como carvão e sílica gel devido ao seu raio atômico grande ($1,45 \times 10^{-10}\text{ m}$) (GRAVES, 1987; MAFRA, 2009; FARIAS, 2016).

A solubilidade de radônio em água depende de fatores físicos, como temperatura e pressão, além de características geoquímicas de seu antecessor. À temperatura de 20°C e sob pressão parcial de 1 atm, sua solubilidade em água é $230\text{ cm}^3\text{ kg}^{-1}$. Além disso, a emanção do radônio das rochas pode alterar a concentração deste radionuclídeo nas águas (SANTOS, 2010a; FARIAS, 2016).

2.6.2 Radônio em águas do subsolo

Rn-222, após ser liberado da estrutura interna e externa dos minerais, pode ser dissolvido em águas do subsolo ou ascender até a atmosfera por meio de fraturas de rochas ou de poros do solo. Sua migração e acumulação dependem, principalmente, das características do solo e da rocha, como porosidade e permeabilidade, da natureza do fluido transportador e do clima da região (CORRÊA, 2006; FIANCO, 2011).

O gás radônio possui elevado poder de difusão na água, por este motivo, águas de rios e córregos possuem baixas concentrações deste gás, enquanto as águas do subsolo possuem maiores teores de radônio devido à quantidade menor de rotas de fuga para a atmosfera. Em meio saturado, o fluxo do radônio é preferencialmente lateral e controlado pelo fluxo da água e o transporte advectivo. Enquanto em meio não saturado, prevalecem processos de difusão

gasosa associados a processos de difusão de vapor e capilaridade (REBELO et al., 2003; FIANCO, 2011).

Após o estudo de Allen-Price (1960) em Devon, Inglaterra, em que a distribuição de câncer foi relacionada com a presença de Rn-222 nas águas de subsolo, tornou-se crescente o interesse na quantificação de radônio nesse tipo de matriz (BAUDRON et al., 2015; VOGIANNIS; NIKOLOPOULOS, 2015), além de trabalhos para estimar a dose e os riscos relacionados ao uso dessas águas (VOGIANNIS; NIKOLOPOULOS, 2015). A maior parte da radioatividade presente nas águas de subsolo provém de Rn-222, seguido por Ra-226 (WHO, 2004). Tais águas são comumente utilizadas nas diversas atividades domésticas, como lavagem de roupas, limpeza doméstica, higiene pessoal (sendo a principal exposição em curto prazo), e o consumo direto, podendo ocorrer durante o manuseio e a utilização dessas águas a inalação e a ingestão desse gás. A ingestão de águas com altos teores de radônio acarreta no aumento da dose recebida pela população, sendo o tecido das paredes do estômago o mais atingido pela radiação (ICRP, 1999).

As concentrações de atividade de radônio nas águas do subsolo geralmente encontram-se no intervalo de 1 a 200 Bq L⁻¹ (WISSER, 2003). O limite máximo recomendado pela *United States Environmental Protection Agency* – USEPA é 11,1 Bq L⁻¹ (USEPA, 1999), porém, estudos ao redor do mundo, inclusive alguns em regiões variadas do Brasil, encontraram valores acima desse limite. Mafra (2009), por exemplo, analisou águas de poços da região de Pinheirinho, em Curitiba (PR) e encontrou valores médios de concentração de Rn-222 de 20 Bq L⁻¹. Nesse estudo, foi testado, inclusive, um método de mitigação para essa concentração de atividade. Para isso, foi utilizada a aeração difusora na qual ocorria um processo de injeção de ar por um aerador conectado em uma placa porosa durante o período de 24 horas. A aeração resultante permitiu estreito contato entre água e gás, facilitando a transferência de componentes indesejáveis da água para o ar. Com esse método, busca-se aumentar a velocidade do processo natural, para que ocorra equilíbrio entre substâncias voláteis, dissolvidas na água (EPA, 1999). Após 4 dias utilizando a aeração difusora, foi constatada diminuição das concentrações de radônio nas amostras de água estudadas de 34 Bq L⁻¹ em média, para uma média de 4 Bq L⁻¹. Tais valores encontraram-se abaixo da concentração de atividade esperada pelo decaimento natural do nuclídeo-pai (Ra-226) e abaixo do limite estabelecido pela USEPA para águas utilizadas para consumo humano, tornando-a segura para consumo (MAFRA, 2009).

O limite máximo de 11,1 Bq L⁻¹ para águas pode inclusive ser excedido em quantidades apreciáveis, principalmente em regiões com ocorrências uraníferas. Como é o caso da região do fosforito uranífero estudada por Lima (1996), em que águas de poços

apresentaram concentrações de atividade de Rn-222 entre 12 Bq L⁻¹ a 1480 Bq L⁻¹. Já o estudo realizado por Santos (2010a) acerca de radionuclídeos naturais presente em águas minerais comercializadas no Recife, encontrou valores de concentração de atividade de radônio entre $5,3 \pm 0,2$ Bq L⁻¹ e 373 ± 7 Bq L⁻¹. Mais ainda, não houve correlação entre as concentrações de Rn-222 e Ra-226 nas águas, tendo sido encontradas altas concentrações de Ra-226 em águas consideradas não-radioativas (SANTOS, 2010a).

Fianco (2011) também encontrou altas concentrações de radônio em águas subterrâneas, em seu estudo na cidade de Porto Alegre (RS). Esse trabalho constatou que metade das amostras de água apresentou concentração de atividade de Rn-222 acima de 100 Bq L⁻¹, atingindo até 500 Bq L⁻¹ em algumas amostras. Neste caso, a atividade específica de radônio dissolvido nas águas subterrâneas analisadas apresentou correlação positiva e significativa (em nível de 95% de confiança) com o urânio equivalente presente na matriz das rochas.

Tendo em vista estes resultados obtidos em estudos anteriores, análises e monitorações da concentração de radônio em águas de poços consumidas e utilizadas pela população devem ser realizadas, principalmente em regiões reconhecidamente uraníferas, de maneira a diminuir os riscos à saúde aos quais estão expostos os indivíduos destas regiões. Outro compartimento importante para a análise dos riscos à saúde relacionados com o radônio é o solo (VOGIANNIS; NIKOLOPOULOS, 2015; NAVARANJAN et al., 2016).

2.6.3 Radônio no solo

No solo, após decair a partir da matriz mineral de Ra-226, o Rn-222 migra através dos macroporos do solo em um processo conhecido por emanção. Em seguida, sofre o processo de difusão e transporte advectivo dentro do perfil do solo. Devido à sua meia-vida de 3,82 dias, Rn-222 pode migrar em longas distâncias em comparação com o seu radionuclídeo análogo, Rn-220 (meia-vida de 55,6 s), formado na série radioativa de Th-232. O transporte advectivo é controlado pela Lei de Darcy, na qual o parâmetro relevante é a permeabilidade, enquanto o coeficiente de difusão é controlado pela porosidade e permeabilidade do solo. A porosidade e a permeabilidade quantificam a capacidade de Rn-222 em movimentar-se devido a um gradiente de concentrações mais elevadas para mais baixas (FARIAS et al., 2016).

Desta forma, a acumulação e circulação do radônio dependem principalmente das propriedades físicas do solo. Em geral, solos têm taxas mais elevadas de emanção do que as rochas das quais são provenientes, devido à formação de agregados com superfície total maior. Quanto menor é o tamanho das partículas do solo, maior pode ser a microporosidade e

a superfície específica, proporcionando grande poder de emissão de radônio (FARIAS et al., 2016). Outro parâmetro importante para a emissão de Rn-222 é a umidade do solo, cuja taxa de emissão pode ser até 30 vezes menor em um solo saturado com água. Isto acontece devido às distâncias de recuo de um átomo Rn-222 na água e no gás, em que na presença de água, um átomo de Rn-222 catapultado percorre uma distância de 0,1 milímetros, enquanto que, na interface solo-gás, o átomo percorre 63 milímetros (REBELO et al., 2002).

Quanto à exalação, a passagem de Rn-222 da matriz geológica para a atmosfera é dependente de circunstâncias meteorológicas (REBELO et al., 2002). A frequência e a quantidade de precipitação influenciam o índice de umidade do solo e a permeabilidade do gás. A pressão atmosférica, a temperatura e a força do vento também exercem influência na exalação, enquanto que geada ou neve podem conduzir a um isolamento temporário da superfície do solo, de forma que o radônio fica acumulado abaixo do isolamento, reduzindo, assim, a taxa de exalação deste gás (REBELO et al., 2002). Além disso, em geral, solos argilosos mal estruturados inibem a migração e difusão do gás, através de processos de sorção ou confinamento, funcionando como selantes que impedem a passagem do radônio do solo para a atmosfera. Variações de umidade tornam estes tipos de solo mais suscetíveis à expansão ou à contração, abrindo ou fechando caminhos de passagem para o radônio através de fissuras. Solos mais arenosos, em geral, favorecem a migração do radônio (FIANCO, 2011).

A taxa de exalação de Rn-222 de um solo tem, portanto, elevada importância para a avaliação dos riscos à saúde associados ao Rn-222. Como solos com altas taxas de exalação contribuem consideravelmente para suas altas concentrações na atmosfera de ambientes fechados, a dose absorvida pela população residente é elevada (GERALDO et al., 2005; MUÑOZ et al., 2017).

2.6.4 Radônio em ambientes internos (indoor)

Altas concentrações de Rn-222 podem ocorrer em ambientes fechados, pouco ventilados ou regiões anômalas e, assim, representar risco potencial à saúde da população que frequenta ou habita esses locais (GERALDO et al., 2005; CORRÊA, 2011). Como visto anteriormente, tanto o radônio presente no solo, quanto aquele presente em águas de poços utilizadas nos afazeres domésticos (principalmente no banho), podem migrar para a atmosfera do interior desses ambientes fechados, sendo as duas principais contribuições para a existência de altos níveis de Rn-222 nestes locais (FARIAS, 2016; HASHIMOTO, 2017).

Quanto à avaliação dos níveis de radônio ambiental, dois tipos de ambientes devem ser distinguidos: os residenciais e os locais de trabalho. Em habitações, concentrações de atividade de radônio de 600 Bq m^{-3} no ar resultam em dose efetiva anual acima de 10 mSv ano^{-1} , necessitando de atividades intervencionais. Em locais com concentração de atividade média abaixo de 200 Bq m^{-3} , não são indicadas quaisquer ações de intervenção, enquanto na faixa entre essas duas concentrações, algumas medidas de menor intensidade podem ser realizadas (ICRP, 1993).

A *International Commission on Radiological Protection* - ICRP, em sua publicação de número 65, de 1993, estabelece medidas para remediar a presença de radônio em ambientes indoor, quando isso se fizer necessário. Para os locais de trabalho, admitindo-se um tempo de ocupação aproximado de $2.000 \text{ horas ano}^{-1}$, o nível recomendado para intervenção neste caso seria entre 500 Bq m^{-3} e 1.500 Bq m^{-3} , que corresponderia a um intervalo de dose anual efetiva entre 3 mSv ano^{-1} e 10 mSv ano^{-1} , respectivamente. As intervenções para valores excessivos devem produzir uma redução acentuada na concentração de radônio e não apenas o suficiente para atingir um nível de exposição abaixo do limite inferior do intervalo recomendado (ICRP, 1993; GERALDO et al., 2005; CORRÊA, 2006).

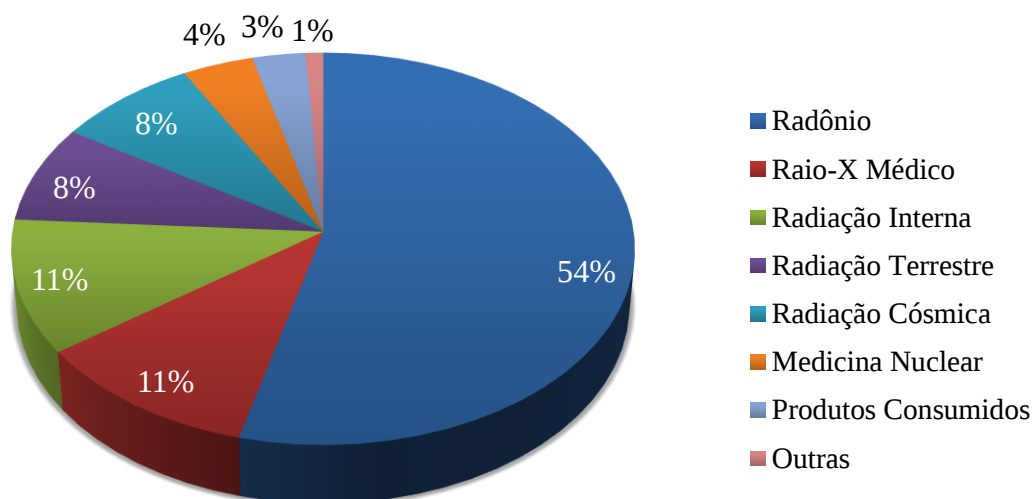
Embora crescente, a quantidade de estudos de caracterização de radônio em residências e ambientes *indoor* no Brasil ainda é pequena, não sendo suficiente para estimar a exposição média da população brasileira ao radônio. Apesar disso, alguns resultados desses estudos (AMARAL, 1992; MELO, 1999; VEIGA et al., 2003) mostram a existência de regiões, cujas concentrações de atividade do radônio são elevadas o bastante para que sejam consideradas medidas de intervenção estabelecidas pela ICRP. Concentrações de atividade de radônio acima de 600 Bq m^{-3} foram encontradas, por exemplo, na área rural de Poços de Caldas (MG), (região de formações vulcânicas), em Belo Horizonte (MG), e em Campo Largo (PR) (AMARAL, 1992; VEIGA et al., 2003; CORRÊA, 2006; SANTOS, 2010b.; CORRÊA, 2011). Com isso, ressalta-se a importância de estudos de medidas, monitoração de radônio em ambientes *indoor* no Brasil e sua relevância para a saúde humana, especialmente em regiões com ocorrências uraníferas.

2.7 Radônio e a saúde humana

Segundo dados da UNSCEAR (2010), o radônio é a maior fonte de exposição natural do homem à radiação ionizante nos dias atuais (Figura 5). Dado o seu decaimento radioativo, alcança a atmosfera ou as águas, podendo ser inalado (principal via de incorporação) ou

ingerido pelo ser humano (EPA, 2015). No interior do organismo humano, Rn-222 apresenta maior risco, pois, apesar das partículas alfa emitidas por este radionuclídeo não ultrapassarem o tecido epitelial das vias aéreas brônquicas, elas transferem grande parte da sua energia cinética para o tecido (MAFRA, 2009, HASHIMOTO, 2017).

Figura 5 - Contribuição das diversas fontes para a exposição humana à radiação



Fonte: Adaptado de UNSCEAR (2010).

Ainda mais, a energia das partículas alfa liberadas pelos produtos de decaimento do radônio podem causar, além da morte das células pulmonares, danos irreversíveis como mutações, instabilidades genéticas e alterações cromossômicas, que podem levar ao desenvolvimento de câncer no pulmão (CORRÊA, 2006; MAFRA, 2009; SANTOS, 2010a, EPA, 2015). Mais ainda, a maior parte dos átomos de polônio gerados a partir do decaimento de Rn-222 são carregados eletricamente e, ao unirem-se às partículas de pó e aerossóis presentes no ar, são fixados nas paredes dos brônquios, aumentando, desta forma, a probabilidade de colisão das partículas alfa geradas durante o decaimento com os núcleos das células do tecido (SANTOS, 2010a, HASHIMOTO, 2017).

Isso tudo leva o radônio a ser considerado uma das principais causas de desenvolvimento de câncer de pulmão no mundo segundo a USEPA (2016), tendo sido classificado pela *International Agency for Research on Cancer* - IARC como um carcinogênico humano (MAFRA, 2009). Nos Estados Unidos, a USEPA estima que

aproximadamente 21.000 mortes por ano estão relacionadas com a inalação do Rn-222 em ambientes fechados (USEPA, 2016).

Em 2000, a *National Radiological Protection Board* - NRPB estimou que o risco de desenvolvimento de câncer de pulmão associado à exposição a 200 Bq m^{-3} de radônio durante toda a vida é de 3 a 5 % para a população em geral, de 10 a 15 % para fumantes e de 1 a 3 % para não-fumantes.

Não só a inalação do Rn-222 é causa de preocupação para a saúde humana, outra importante via de incorporação deste radionuclídeo ao organismo humano é a ingestão de águas com altas concentrações de atividade desse radionuclídeo. Como resultado, ocorre o aumento da dose recebida pela população. A contribuição da dose derivada da ingestão de radônio pode, inclusive, ser maior do que aquela proveniente da inalação do gás (ICRP, 1999; SANTOS, 2010a). Quando ocorre a ingestão de água com altos teores de radônio, as células mais afetadas são as células-tronco e aquelas em proliferação (que mantêm a capacidade de divisão contínua) na garganta e nas paredes do estômago. No estômago, o gás é difundido nas paredes, sendo interceptado pela mucosa e estrutura vascular do órgão (MAFRA, 2009). As partículas alfas emitidas pelo radionuclídeo não atingem uma maior profundidade, pois o tecido que reveste internamente o estômago absorve a maior parte do gás. O radônio, então, entra na corrente sanguínea seguindo até o fígado e outros órgãos do corpo humano, podendo afetar suas células e acarretar o desenvolvimento de câncer. A parte restante não absorvida pelo estômago, ao percorrer o trato digestivo, pode ser absorvido também pelo intestino delgado, sendo capaz de causar prejuízos às células desse órgão (MAFRA, 2009).

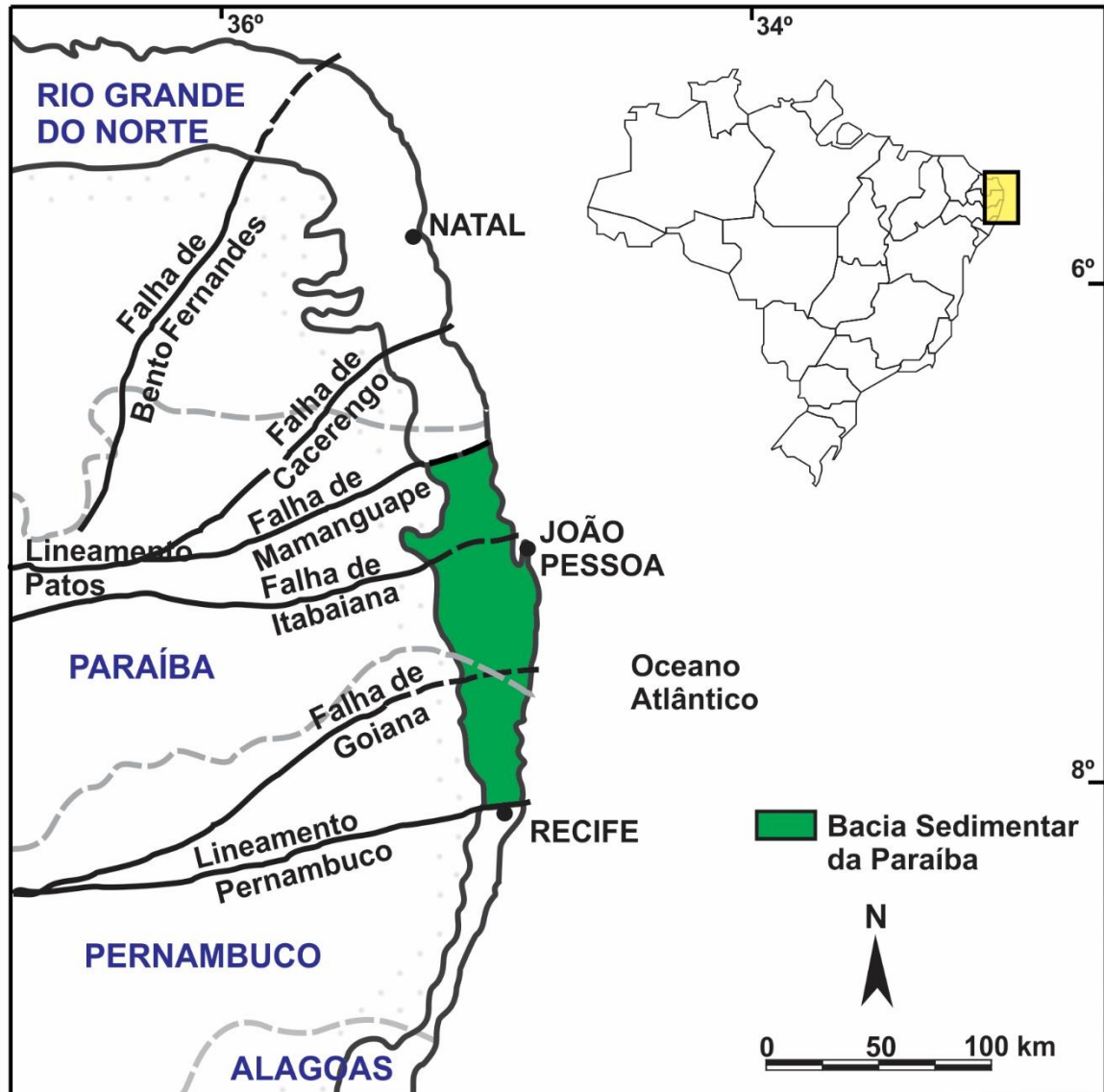
Com isso, a existência de altos níveis deste radionuclídeo nos solos e nas águas contribui efetivamente para o aumento da dose à qual a população dessas regiões está exposta, elevando o risco de desenvolvimento de câncer de pulmão, estômago e bexiga, principalmente (MAFRA, 2009; SANTOS, 2010a, DUGGAL et al, 2015; MEHTA et al., 2015). A avaliação e monitoração dos níveis de Rn-222 nessas matrizes ambientais é fundamental para regiões uraníferas como é o caso da área de influência do fosforito uranífero da RMR.

2.8 O Fosforito Uranífero da RMR

Souza (2006) denominou Bacia Sedimentar da Paraíba, a depressão da superfície terrestre localizada entre o Lineamento Pernambuco (PE) e o Alto de Mamanguape (PB), que perfaz uma área de aproximadamente 5.300 km^2 em sua porção emersa (Figura 6). Na área da Bacia Sedimentar da Paraíba, há ocorrência de jazidas sedimentares fosfáticas de origem marinha (Figura 7), cuja principal característica é a forma tabular de grande extensão lateral,

com espessura em subsuperfície variando de alguns centímetros a vários metros. Essa rocha sedimentar ocorre por toda a bacia sedimentar.

Figura 6 - Localização da Bacia Sedimentar da Paraíba



Fonte: Souza (2006).

Os fosforitos são responsáveis por mais de 75% da produção de fosfatos, e, geralmente, estão associados à fácies de plataforma continental. Apresentam-se na forma amorfa ou criptocristalina e seus teores, expressos em anidrido fosfórico (P_2O_5), variam entre 10 e 25 %. Sua composição é formada por fosfato tribásico de cálcio, sendo, essencialmente, uma variedade fibrosa do mineral apatita. Suas variedades mais comuns são fluorapatita – $Ca_5(PO_4)F$, cloroapatita – $Ca_5(PO_4)Cl$ e hidroxiapatita – $Ca_5(PO_4)OH$ (SOUZA, 2006).

Figura 7 - Fosforito uranífero encontrado por Souza (2006) em Paulista, Pernambuco, utilizando cintilômetro portátil

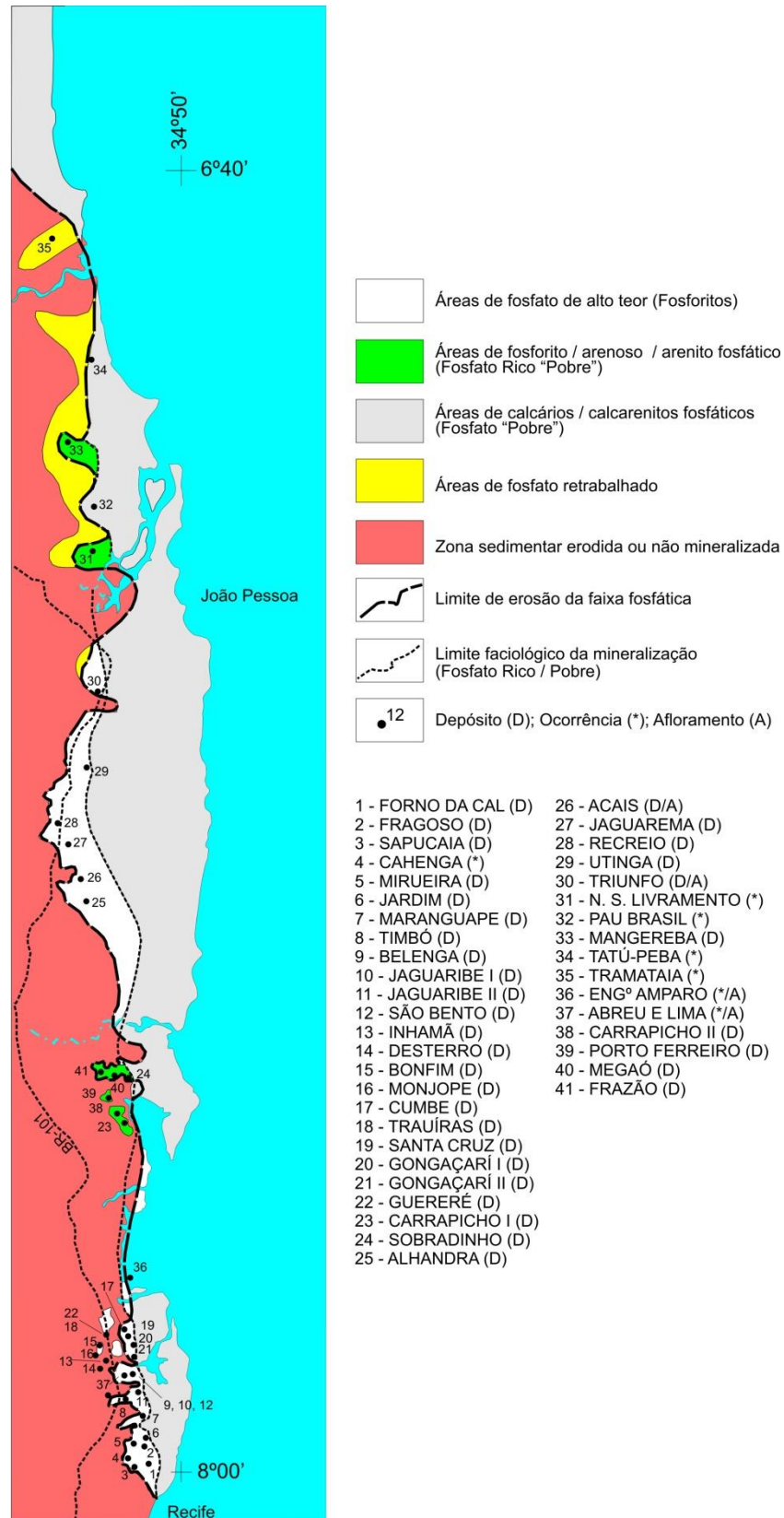


Fonte: Souza (2006).

Desde o final da década de 1940, após estudos do Professor Paulo José Duarte, foram constatados teores consideráveis de fósforo no Município de Olinda, sendo conhecida a existência de fosforito na faixa litorânea do Estado de Pernambuco. Essa descoberta, em 1949, desencadeou intensivas investigações, tanto por órgãos governamentais como por empresas privadas (SOUZA, 2006). A distribuição geográfica do fosforito uranífero compreende uma faixa descontínua, estendendo-se para o norte, atravessando ainda os municípios de Paulista, Abreu e Lima e Igarassu, que fazem parte da Região Metropolitana do Recife (Figura 8). Esses perfis ajudam a demarcar os intervalos mineralizados da coluna sedimentar, uma vez que o nível de radioatividade das rochas contendo fósforo aumenta com o teor de U_3O_8 (REZENDE, 1994).

A Região Metropolitana do Recife (RMR), Pernambuco, Brasil, encontra-se na área de ocorrência em subsuperfície do fosforito uranífero (Figura 8). Em alguns bairros dos Municípios de Paulista e de Abreu e Lima, existem depósitos do fosforito uranífero localizados próximos a superfície estudados nessa pesquisa científica.

Figura 8 - Distribuição dos depósitos de fosforito uranífero na região de estudo



Fonte: Souza (2006).

3 MATERIAL E MÉTODOS

Rn-222 e nuclídeos associados foram quantificados em águas de cacimbas utilizadas pela população da Região Metropolitana do Recife, assim como nos solos circunvizinhos. Foram aplicadas ferramentas para a avaliação de risco da população dessas áreas à exposição ionizante decorrente de Rn-222, Ra-226, Ra-228 e K-40.

3.1 Áreas de estudo

A pesquisa científica foi desenvolvida na Região Metropolitana do Recife, Estado de Pernambuco, Brasil, a partir da seleção de alguns bairros com ocorrência de fosforito uranífero próxima a superfície: Bairro do Fosfato, no Município de Abreu e Lima, Bairro de Paratibe e Bairro Pau Amarelo, no Município de Paulista (Figura 9).

Figura 9 - Localização dos bairros estudados da Região Metropolitana do Recife, Pernambuco, Brazil



Fonte: Adaptado do Google LLC (2015).

3.2 Levantamentos radiométricos da região de estudo

Com o objetivo de determinar as unidades amostrais foram realizados levantamentos radiométricos em áreas do fosforito uranífero de cada região de estudo. Para isso, as radiações de fundo (*background*) desses locais foram medidas utilizando um cintilômetro portátil, modelo Saphymo Srat, modelo SPP2-NF, pertencente à CNEN, calibrado no Departamento de Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco - DEN/UFPE. O cintilômetro portátil utilizado (Figura 9) possui cristal de NaI (Tl) com diâmetro de 3,8 cm e comprimento de 2,5 cm. As medições foram realizadas a 0,7 m do solo percorrendo transecto de no mínimo 100 m. Os dados foram obtidos utilizando os intervalos de 0 cps (contagens por segundo) a 150 cps, e de 0 a 500 cps nos locais com níveis de radioatividade mais elevados. Sistema de Posicionamento Global (GPS) foi empregado para o georreferenciamento dos locais avaliados.

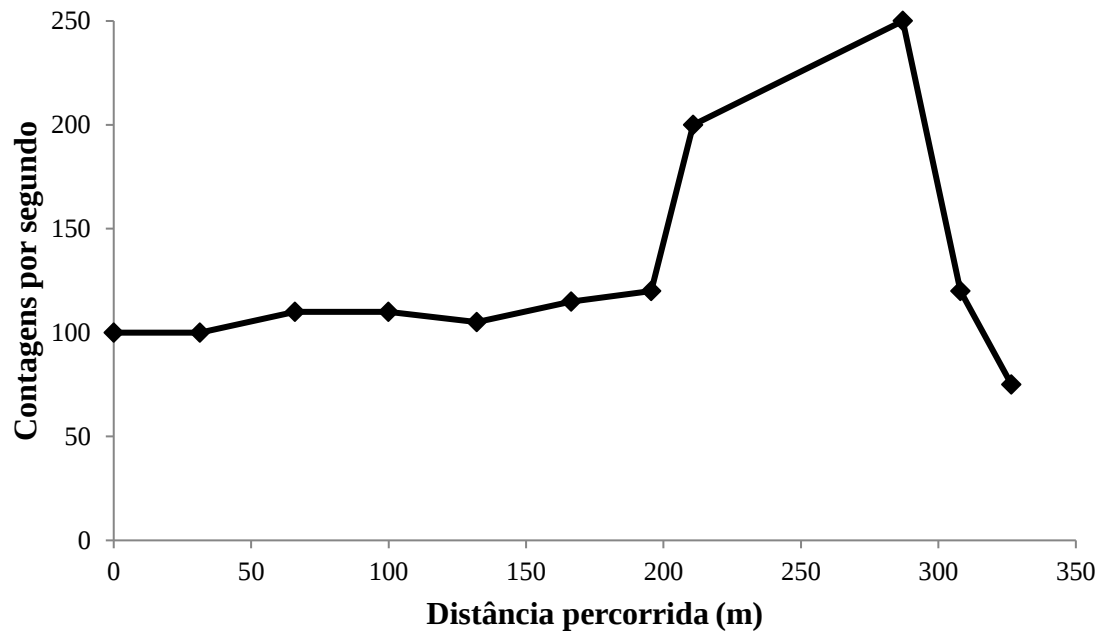
Figura 10 - Cintilômetro SAPHYMO modelo SRAT-SPP/2 para o levantamento radiométrico da área de estudo



Fonte: O autor.

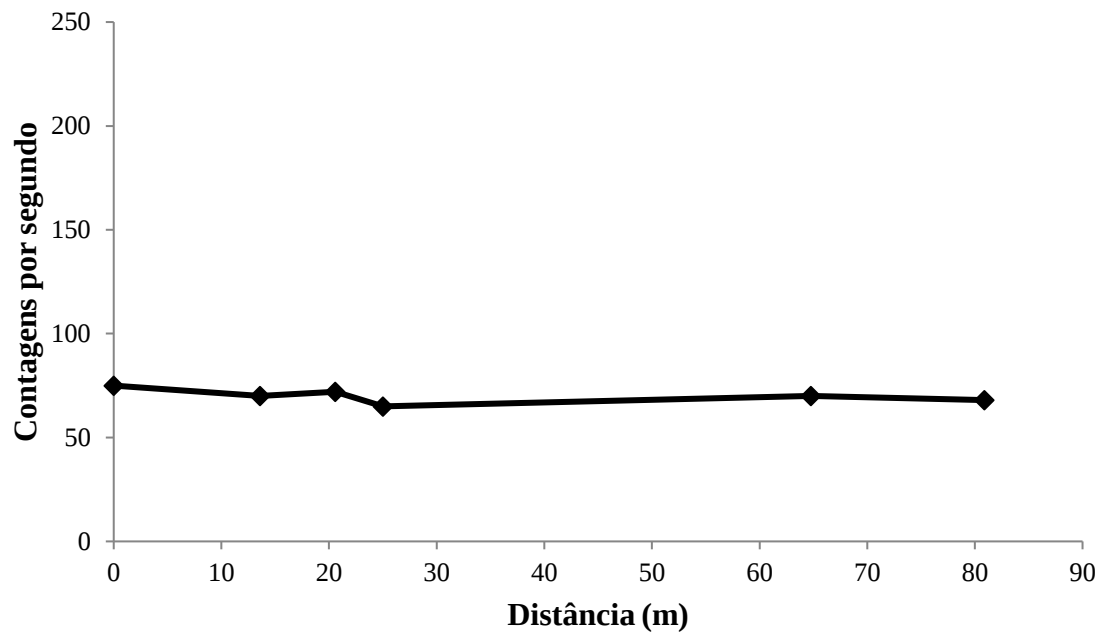
Após as medições, os respectivos transectos das regiões estudadas encontram-se nas Figuras 10, 11, 12 e 13. Como esperado, as maiores concentrações de atividade foram obtidas para o transecto Norte-Sul do Bairro do Fosfato, indicando áreas com alta concentração de atividade de radionuclídeos naturais.

Figura 11 - Transecto Norte-Sul do Bairro do Fosfato, Município de Abreu e Lima, para escolha da área de estudo



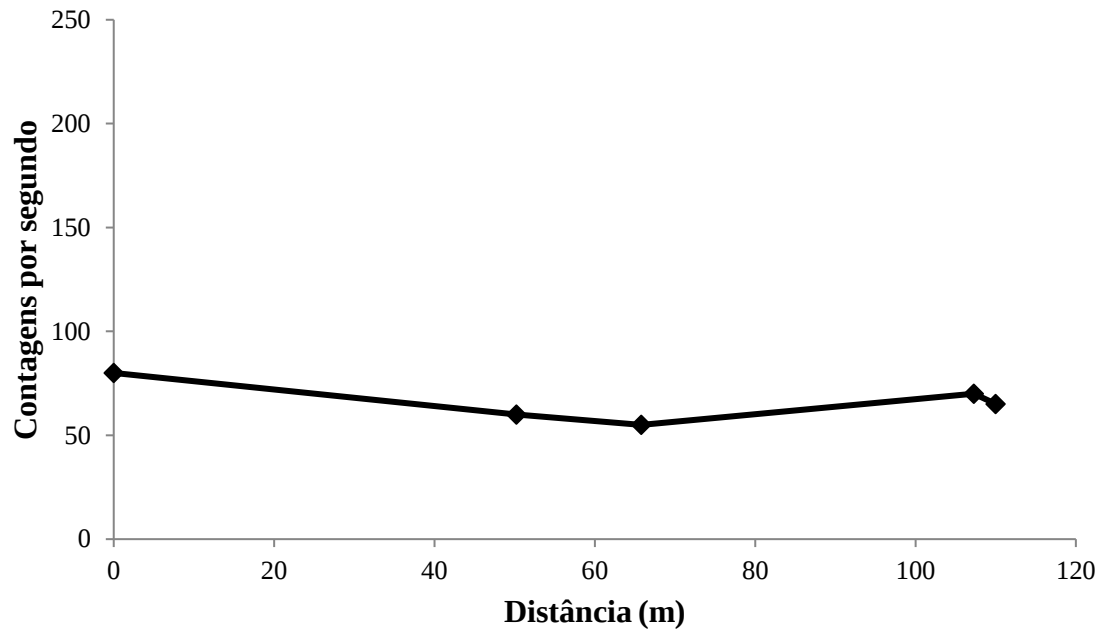
Fonte: O autor.

Figura 12 - Transecto Leste-Oeste do Bairro de Paratibe, Município do Paulista, para escolha da área de estudo



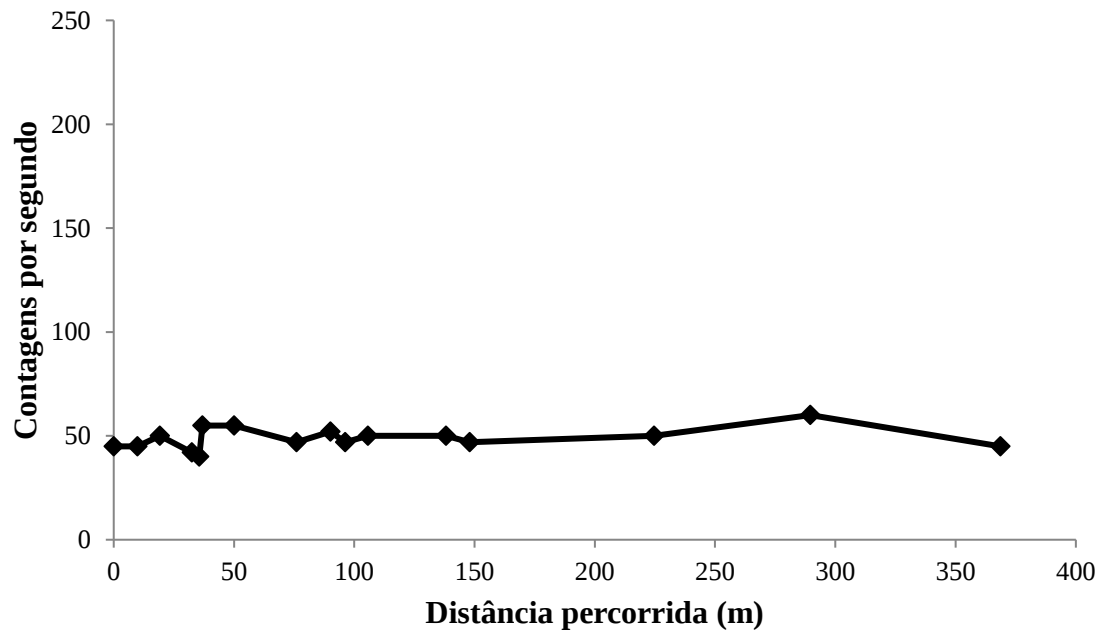
Fonte: O autor.

Figura 13 - Transecto Norte-Sul do Bairro do Paratibe, Município do Paulista, para escolha da área de estudo



Fonte: O autor.

Figura 14 - Transecto Norte-Sul do Bairro de Pau Amarelo, Município do Paulista, para escolha da área de estudo



Fonte: O autor.

3.3 Escolha das unidades amostrais

As regiões anômalas com relação à radiação de fundo foram selecionadas de acordo com o resultado do levantamento radiométrico. Foram definidas como unidades amostrais as residências que possuíam cacimbas no Bairro do Fosfato (Figura 15) e no de Paratibe (Figura 16). Para fins de comparação, foram selecionadas residências com cacimbas no Bairro de Pau Amarelo (Figura 17), cujos resultados do levantamento radiométrico foram inferiores às demais áreas (menor que 50 cps). A localização das unidades amostrais está detalhada na Tabela 4 para o estudo de águas de cacimbas e solos.

Figura 15 - Localização das unidades amostrais no bairro do Fosfato, Abreu e Lima



Fonte: Adaptado do Google LLC (2015).

Figura 16 - Localização das unidades amostrais no Bairro de Paratibe, Paulista



Fonte: Adaptado do Google LLC (2015).

Foram realizadas a caracterização química dos solos estudados utilizando a técnica de Fluorescência de Raios-X por Energia Dispersiva (EDXRF). Também foram realizadas medições de taxa de exalação de Rn-222, além da determinação de concentração de atividade de Ra-226 e Ra-228 utilizando a técnica de Espectrometria Gama de Alta Resolução - EGAR. Na água, foram determinadas as concentrações de atividade de Rn-222 e Ra-226 utilizando a técnica de Cintilação Líquida de Ultrabaixo Nível de Radiação de Fundo – CLUBR, seguindo protocolo analítico semelhante ao utilizado por Santos (2010a). Os procedimentos analíticos estão descritos nas Seções 3.3 e 3.4.

Figura 17 - Localização das unidades amostrais no Bairro de Pau Amarelo, Paulista



Fonte: Adaptado do Google LLC (2015).

Tabela 4 - Coordenadas geográficas das unidades amostrais. AL = Abreu e Lima. PB = Paratibe. PA = Pau Amarelo

Unidade amostral	Latitude	Longitude
AL01	7°53'46"S	34°53'33"W
AL02	7°53'45"S	34°53'33"W
AL03	7°53'39"S	34°53'34"W
AL04	7°53'42"S	34°53'34"W
AL05	7°53'39"S	34°53'34"W
PB01	7°56'25"S	34°53'54"W
PB02	7°56'24"S	34°53'54"W
PB03	7°56'19"S	34°53'53"W
PB04	7°56'18"S	34°53'53"W
PB05	7°56'01"S	34°53'54"W
PA01	7°53'48"S	34°49'46"W
PA02	7°53'48"S	34°49'43"W
PA03	7°53'58"S	34°49'45"W
PA04	7°53'48"S	34°49'36"W

Fonte: O autor.

3.4 Determinações em águas de poços

Nesta secção, encontra-se detalhado todo o procedimento realizado neste estudo para a análise das águas de poços das unidades amostrais, incluindo a coleta, a preparação e a análise por CLUBR. As amostragens foram realizadas entre os meses de abril e agosto, ou seja, entre as estações de outono e inverno da região. Buscou-se sempre a realização destas etapas em dias sem chuvas.

3.4.1 Coleta e preparação das amostras

Inicialmente, em laboratório do Serviço de Monitoração Ambiental do Centro Regional de Ciências Nucleares do Nordeste (SEAMB/CRCN-NE), foi preparado o coquetel cintilador a ser utilizado, composto por 1,0 L de p-xileno, 7 g de 2,5 difeniloxazol (PPO), e 0,75 g de 1,4 bis [2-(5-difeniloxazol)]-benzeno (POPOP). Também em laboratório, transferiu-se 12,0 mL deste coquetel para recipientes de vidro apropriados para análises por CLUBR, denominados *vials*. As amostras foram coletadas diretamente de poços de uso doméstico presentes nas regiões identificadas com maior nível de radioatividade. No local da coleta, foram separados cerca de 3,0 L de água dos poços em um balde plástico, e injetadas alíquotas de 12,0 mL de cada amostra sob o coquetel cintilador nos *vials*, gerando duas fases distintas, como mostra a Figura 18. Os recipientes foram fechados e as amostras agitadas durante 5 minutos a fim de extrair o radônio para a fase orgânica. Foram analisadas triplicatas das amostras. Para o branco analítico, foram preparados em laboratório *vials* da mesma natureza dos utilizados para as amostras contendo 12,0 mL água ultrapura Milli-Q® e 12,0 mL do coquetel de cintilação, que seguiu para campo de modo a emular possíveis contaminações nas amostras.

Figura 18 - Vials utilizados contendo o coquetel cintilador e amostras de águas de poços



Fonte: O autor.

3.4.2 Concentração de atividade de Rn-222

Para a determinação das concentrações de atividade do radônio em água, foi utilizada a técnica de CLUBR desenvolvida por Prichard e Gesell (1977). A análise das amostras foi realizada após um tempo mínimo de três horas da realização da coleta, suficiente para que o Rn-222 entrasse em equilíbrio com seus radionuclídeos descendentes emissores alfa (Po-214 e Po-218). Utilizou-se, para isso, do Espectrômetro de Cintilação Líquida (LSC) produzido pela Perkin Elmer, modelo Quantulus 1220, do Laboratório de Cintilação Líquida do CRCN-NE (Figura 19). O tempo de contagem para cada amostra foi de 100 minutos. Para a diferenciação dos espectros provenientes das partículas alfa e das partículas beta foi utilizada a ferramenta de discriminação de pulsos (PSA), cujo valor foi fixado em 90. A qualidade do procedimento analítico da determinação de Rn-222 em água também foi avaliada a partir da utilização de padrões internos de Ra-226 do PNI – IRD/CNEN independentes daqueles utilizados para o cálculo de eficiência. Foram utilizados cinco padrões com concentrações de atividade de Ra-226 diferentes, preparados e analisados de forma análoga à análise de Ra-226 das amostras.

Figura 19 - Espectrômetro de Cintilação Líquida, Quantulus 1220, da Perkin Elmer.



Fonte: O autor.

As concentrações de atividade de Rn-222 (A_{Rn}) nas amostras foram calculadas a partir da Equação 4, de acordo com a *American Society for Testing and Materials* - ASTM (1998):

$$A_{Rn} = \frac{R_A - R_B}{60 \times V \times E \times 3} e^{-\lambda t} \quad (4)$$

na qual, R_A é a taxa de contagem da amostra (cpm); R_B é a taxa de contagem do branco analítico (cpm); 60 é o fator de conversão de cpm para cps; 3 é o fator de conversão para os emissores alfa presentes na amostra (Rn-222, Po-218 e Po-214); V é o volume da amostra; E é a eficiência de contagem, e $e^{-\lambda t}$ é a correção da atividade a partir do tempo. Para isso, λ é a constante de desintegração do Rn-222 (min^{-1}) e t é o tempo entre a coleta e metade do tempo de contagem (min).

A determinação da eficiência de contagem E do LSC foi realizada a partir de solução padrão de Ra-226 produzida pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), cuja concentração de atividade de Ra-226 de referência foi $11,56 \text{ Bq L}^{-1}$ (data: 02/10/14). Em recipientes de vidro, foram preparadas três amostras da solução padrão contendo 12,0 mL cada e 12,0 mL do mesmo coquetel cintilador. Foram determinadas as atividades de radônio nas soluções utilizando procedimento analítico análogo ao das amostras. A eficiência de contagem foi calculada utilizando os resultados obtidos após 21 dias da preparação das soluções padrão, quando o Rn-222 da amostra já se encontrava em equilíbrio secular, utilizando a Equação 5:

$$E = \frac{R_A - R_B}{60 \times V \times A_{Ra} \times 3} \quad (5)$$

em que, R_A é a taxa de contagem da solução padrão (cpm); R_B é a taxa de contagem do branco analítico (cpm); 60 é o fator de conversão de cpm para cps; 3 é o fator de conversão para os emissores alfa presentes na amostra (Rn-222, Po-218 e Po-214); V é o volume da solução padrão; A_{Ra} é a atividade da solução padrão de Ra-226; λ é a constante de desintegração do Rn-222 (min^{-1}), e t é o tempo entre a coleta e metade do tempo de contagem (min).

3.4.2.1 Riscos associados à ingestão de Rn-222

Para melhor avaliação dos riscos associados à presença de radônio nas águas de poços estudadas e de posse dos resultados anteriores foram calculados os valores de dose efetiva E_{ing} anual associada à ingestão do Rn-222 (unidade em mSv ano⁻¹). Este cálculo foi feito com base nos estudos realizados por Yadav et al. (2014), Duggal et al. (2016) e Ravikumar e Somashekar (2018), segundo a Equação 6:

$$E_{ing} = C_{Rn} \times Q_{\text{água}} \times T \times 1000 \times DCF \quad (6)$$

na qual, C_{Rn} é a concentração de atividade de Rn-222 na água (Bq L⁻¹); $Q_{\text{água}}$ é a quantidade diária de água consumida (L dia⁻¹); T é o intervalo de tempo de consumo da água (no caso 365 dias); 1000 é coeficiente de conversão de Sv para mSv, e DCF é o Coeficiente de Dose Efetiva associada à ingestão de Rn-222 (no caso $3,5 \times 10^{-9}$ Sv Bq⁻¹).

As quantidades de consumo de água por faixa etária utilizadas para cálculos neste estudo se basearam na publicação do Institute of Medicine of the National Academies (2005) conforme mostra a Tabela 5.

Tabela 5 - Consumo de água por faixa etária.

Faixa etária	Sexo	L dia ⁻¹	L ano ⁻¹
0-6 meses	-	0,7	255,5
7-12 meses	-	0,8	292,0
1-3 anos	-	1,3	474,5
4-8 anos	-	1,7	620,5
9-13 anos	M	2,4	876,0
	F	2,1	766,5
14-18 anos	M	3,3	1204,5
	F	2,3	839,5
>18 anos	M	3,7	1350,5
	F	2,7	985,5

Fonte: Adaptado de Institute of Medicine of The National Academies (2005).

3.4.3 Concentração de atividade de Ra-226

Após a realização das determinações do radônio, as amostras foram armazenadas à temperatura ambiente (24 °C) e ao abrigo da luz por pelo menos 21 dias, ou seja, até que o radônio atingisse o equilíbrio secular com seu progenitor. Assim, foi possível estimar a concentração de atividade Ra-226 nas amostras a partir de nova determinação da atividade de Rn-222. O protocolo analítico utilizado foi idêntico ao anterior e a concentração de atividade Ra-226 foi estimada a partir da Equação 7, cujos parâmetros são aqueles da Equação 4. Porém não se faz necessária, a correção da atividade pelo tempo uma vez que a constante de desintegração do Ra-226 é muito pequena, assim $e^{-\lambda t}$ tende a 1.

$$A_{Ra} = \frac{R_A - R_B}{60 \times V \times E \times 3} \quad (7)$$

3.5 Determinações no solo

Nesta seção são descritos todos os procedimentos analíticos realizados no presente trabalho para o estudo dos solos das unidades amostrais escolhidas, incluindo a coleta, preparação e análise radiométrica e química. As amostragens e determinações em campo nos solos também foram realizadas entre os meses de abril e agosto, ou seja, entre as estações de outono e inverno da região. Buscou-se sempre a realização destas etapas em dias sem chuvas.

3.5.1 Coleta e preparação das amostras

Em cada ponto de amostragem (Figuras 15, 16 e 17), foram coletadas três amostras de solo a 10 cm da superfície com massas de aproximadamente 100 g. No Serviço de Monitoração Ambiental do CRCN/NE, as amostras foram secas em estufa à 60° C e cominuídas com auxílio de almofariz e pistilo até tamanho de partículas inferior a 80 µm. Para as determinações de concentrações de atividade de radionuclídeos naturais, alíquotas de cerca de 40 g de cada amostra foram transferidas para recipientes cilíndricos de polietileno e, em seguida, hermeticamente seladas com selante à base de silicone. Os recipientes foram armazenados sob condições controladas de temperatura (24 °C) e umidade relativa do ar (60%) por um período de 30 dias para que os radionuclídeos-filhos de interesse do Ra-226 entrassem em equilíbrio secular.

Por se tratar de diferentes regiões de amostragem, foi necessária a caracterização química prévia das amostras dos solos estudados. Para isso, utilizou-se a Fluorescência de Raios-X por Dispersão de Energia – EDXRF, que é uma técnica não destrutiva, multielementar e com rapidez nas análises.

3.5.2 Caracterização química dos solos

Para verificar a variabilidade dos tipos de solo estudados, porções-teste de 0,5 g de cada amostra foram transferidas para portas-amostras de polietileno, que foram vedados na parte superior e inferior com filme de polipropileno específico para análise química por EDXRF. Para isso, foi utilizado o espectrômetro de modelo EDX 720, produzido pela Shimadzu (Figura 20). Para a avaliação da qualidade do procedimento analítico por EDXRF, foram utilizados os materiais de referência SRM 2709 - *San Joaquin Soil*, produzido pelo NIST, e IAEA SOIL-7, produzido pela IAEA.

Figura 20 - Espectrômetro de Fluorescência de Raios-X por Energia Dispersiva.



Fonte: O autor.

As análises foram realizadas em atmosfera com pressão menor que 30 Pa, com tempo de detecção de 300 segundos, e tempo morto de, no máximo, 35% para cada grupo analítico. As tensões utilizadas foram de 15 kV para elementos químicos de número atômico menor que 22 e, 50 kV, para os demais (Tabela 6).

Tabela 6 - Condições analíticas para a quantificação de elementos químicos por EDXRF.

Analito	Tensão (kV)	Corrente elétrica (μA)	Energia do fotopico (keV)	Filtro
Alumínio	15	377	1,49	-
Chumbo	50	1000	12,67	Mo-Ni
Estrôncio	50	1000	14,15	Mo
Ferro	50	1000	6,40	Mo
Gálio	50	1000	9,24	Mo
Magnésio	15	1000	1,25	Al
Manganês	50	1000	5,90	Mo
Potássio	15	377	3,31	-
Silício	15	377	1,74	-
Titânio	50	51	4,51	-
Vanádio	50	76	4,94	Ti
Zinco	50	1000	8,64	Mo

Fonte: O autor.

Antes da realização das análises, foi realizada a calibração em energia e resolução utilizando o padrão A-750, fornecido pelo fabricante do equipamento. Esse padrão interno constitui-se de uma liga metálica composta por alumínio, estanho, magnésio, ferro e cobre, o que torna possível a calibração em diversas regiões do espectro de raios-X. Foi utilizado o padrão SUS como controle interno, que é uma liga composta pelos elementos químicos Cr, Fe, Mn, Mo e Ni, também fornecido pelo fabricante, para verificar a calibração anteriormente realizada. Materiais de referência, produzidos pelo *National Institute of Standard and Technology* - NIST e pela *International Atomic Energy Agency* - IAEA, foram utilizados para a confecção da curva analítica (FERNANDEZ et al., 2017).

Com os resultados padronizados, foi realizada a Análise por Componentes Principais para a redução no número de variáveis e facilitação da obtenção de agrupamento das amostras de solos analisadas.

3.5.3 Taxa de exalação superficial de Rn-222 no solo

Para a determinação da taxa de exalação superficial de radônio nos solos estudados, inicialmente retirou-se a camada de 5 cm do solo para a redução da influência da vegetação e serapilheira presente na superfície do local. Utilizou-se de um detector de partículas alfa, modelo AlphaGuard, uma câmara de exalação, modelo RadonBox e uma unidade de

bombeamento, modelo AlphaPump, todos produzidos pela SaphymoGmbH, como apresentado na Figura 21. O AlphaGUARD é um detector do tipo câmara de ionização com o módulo pulso de contagem, ou seja, quando as partículas alfa produzidas pelo decaimento do Rn-222 e dos seus filhos interagem com o ar do interior da câmara, geram ionizações e pulsos elétricos são contabilizados. Os ensaios foram realizados durante, no mínimo, 3.600 segundos nos pontos AL01, AL02, AL03, PA01, PB02 e PB04 das Figuras 15, 16 e 17, respectivamente.

Figura 21 - Sistema de detecção utilizando a câmara RadonBOX para a determinação da taxa de exalação superficial de Rn-222 em campo



Fonte: O autor.

O cálculo da concentração de radônio foi baseado na taxa de crescimento da radioatividade do radônio na câmara versus o tempo ($\frac{dN}{dt}$), que é dada pela taxa de exalação (E) por unidade de área (a), corrigida pela taxa de decaimento do radônio (λN). Uma vez que o produto entre a constante de decaimento e o tempo é muito menor que 1 ($\lambda t \ll 1$), o cálculo pode ser simplificado pela Equação 8 (TUFAIL et al., 1992):

$$E = \frac{V \times C}{a \times t} \quad (8)$$

em que, V é o volume da câmara de exalação ($3,4 \times 10^{-2} \text{ m}^3$ para a RadonBOX); C é a concentração de radônio (Bq m^{-3}); a é a área de exalação ($2,109 \times 10^{-1} \text{ m}^2$ para a RadonBOX) e E é a taxa de exalação ($\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$), e t é o tempo de medição (s).

3.5.4 Concentração de atividade de radionuclídeos naturais

A técnica de Espectrometria Gama de Alta Resolução (EGAR) foi empregada para determinar as concentrações de atividade de Ra-226 após equilíbrio secular nas amostras dos solos estudados. Também foram determinadas as concentrações de Ra-228 e K-40 nas mesmas amostras para posterior avaliação de riscos associados à presença desses radionuclídeos nos solos. Para isso, foram utilizados detectores de Germânio Hiperpuro (HPGe) de modelos GC4019 e GC1022 semelhantes ao da Figura 22, ambos produzidos pela Canberra®, com eficiência relativa, respectivamente, de 40% e 10% com resolução (FWHM) de 2,14 keV e 1,64 keV no fotopico de energia 1332,50 keV do Co-60.

Porções-teste de 40 g das amostras de solos foram transferidas para placas de petri confeccionadas em polietileno e seladas com selante à base de silicone. Após 30 dias, as medições das atividades de radionuclídeos naturais nos solos amostrados foram realizadas durante 80.000 segundos para cada amostra. Para o controle da qualidade do procedimento analítico, foram determinadas as concentrações de atividades de Ra-226, Ra-228 e K-40 em alíquotas de um padrão interno de solo do Programa Nacional de Intercomparação (PNI) fornecido pelo IRD/CNEN e no Material de Referência IAEA 314 – *Soil Stream*, utilizando o mesmo protocolo analítico para as amostras.

Para a calibração em energia do espectrômetro gama, foram utilizadas fontes padrões seladas pontuais de Co-60, Eu-152 e Am-241 certificadas pelo IRD/CNEN. Como estes radionuclídeos são geradores de vários fotopicos gama com boas probabilidades de emissão, as energias utilizadas para a calibração estiveram bem distribuídas por todo o espectro, isto é, desde 60 keV até 1408 keV.

A curva de eficiência de detecção do sistema foi construída utilizando uma matriz sólida de densidade similar à das amostras, à qual se adicionou uma quantidade conhecida de uma solução padrão de Ba-133, Cs-137, Eu-152, e Am-241. O ajuste polinomial foi realizado usando o programa de computador Genie 2000 (CANBERRA, 2009).

Os radionuclídeos de interesse foram os produtos de decaimento do Ra-226 e do Ra-228 que se encontravam em equilíbrio secular. Assim, foi possível estimar a concentração de atividade do Ra-226 utilizando as concentrações de atividade do Pb-214 e do Bi-214, calculadas a partir da média dos valores encontrados para os raios gama de energias 351,9 keV e 1764,5 keV, respectivamente, bem como, a atividade do Ra-228 utilizando a concentração de atividade do Ac-228, calculada a partir da média dos valores encontrados para os raios gamas de energias 911,2 keV e 964,7 keV. Foram determinadas também as

concentrações de K-40 nos solos estudados a partir dos raios gama de energia 1460,82 keV. Todas os cálculos foram realizados no programa de computador Genie (CANBERRA, 2009) utilizando protocolo semelhante ao descrito por PAIVA et al. (2015).

Figura 22 - Sistema EGAR com detector HPGe utilizado para a determinação de radionuclídeos naturais



Fonte: O autor

3.5.4.1 Riscos associados à presença de Ra-226, Ra-228 e K-40 no solo

Para melhor avaliação dos riscos associados à presença de radionuclídeos naturais nos solos estudados, foram calculados os valores de atividade equivalente de rádio (Ra_{eq}) a partir da Equação 9 (EUROPEAN COMMISSION, 1999),

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + \left(\frac{10}{7}\right) A_{Th} + \left(\frac{10}{130}\right) A_K \quad (9)$$

o índice gama (I_γ) pela Equação 10 (EUROPEAN COMMISSION, 1999),

$$I_\gamma = \left(\frac{A_{Ra}}{300}\right) + \left(\frac{A_{Th}}{200}\right) + \left(\frac{A_K}{3000}\right) \quad (10)$$

e o índice alfa (I_α) de cada solo, utilizando a Equação 11 (EUROPEAN COMMISSION, 1999):

$$I_\alpha = \frac{A_{Ra}}{200} \quad (11)$$

nas quais, A_{Ra} , A_{Th} , e A_K são as concentrações de atividade de Ra-226, de Th-232 (estimadas a partir das concentrações de Ra-228 no equilíbrio secular) e K-40, respectivamente.

Com esses resultados, para uma avaliação mais profunda dos riscos à saúde associados à presença desses radionuclídeos nos solos, foi possível calcular a taxa de dose gama absorvida (D) um metro acima do solo originada do Ra-226, Ra-228 e K-40, e, assim, estimar a dose efetiva anual (E) devido à presença desses radionuclídeos nos solos estudados de acordo com as Equações 12 e 13 (EUROPEAN COMMISSION, 1999; UNSCEAR, 2000):

$$D = 0,461 A_{Ra} + 0,623 A_{Th} + 0,0414 A_K \quad (12)$$

$$E = D \times 8766 \times 0,7 \times 10^{-6} \quad (13)$$

3.6 Avaliação da qualidade do procedimento analítico

Para a avaliação da qualidade do procedimento analítico, foi utilizado o Número E_n conforme a Equação 14. Para isso, foram calculadas as incertezas analíticas expandidas em nível de 95% de confiança de todos os resultados analíticos obtidos nessa pesquisa.

$$E_n = \frac{V_{obt} - V_{ref}}{\sqrt{U_{obt}^2 + U_{ref}^2}} \quad (14)$$

na qual, V_{obt} é o valor obtido experimentalmente, V_{ref} é o valor de referência, U_{obt} é a incerteza expandida em nível de 95% de confiança do valor obtido e U_{ref} é incerteza expandida em nível de 95% de confiança do valor de referência (ISO, 2005).

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

Neste capítulo são apresentados os resultados obtidos das análises radiométricas e químicas realizadas no presente estudo, bem como a garantia da qualidade do procedimento analítico, além dos valores calculados para a análise de riscos à saúde associados à presença de Rn-222, Ra-226, Ra-228 e K-40 nas matrizes estudadas.

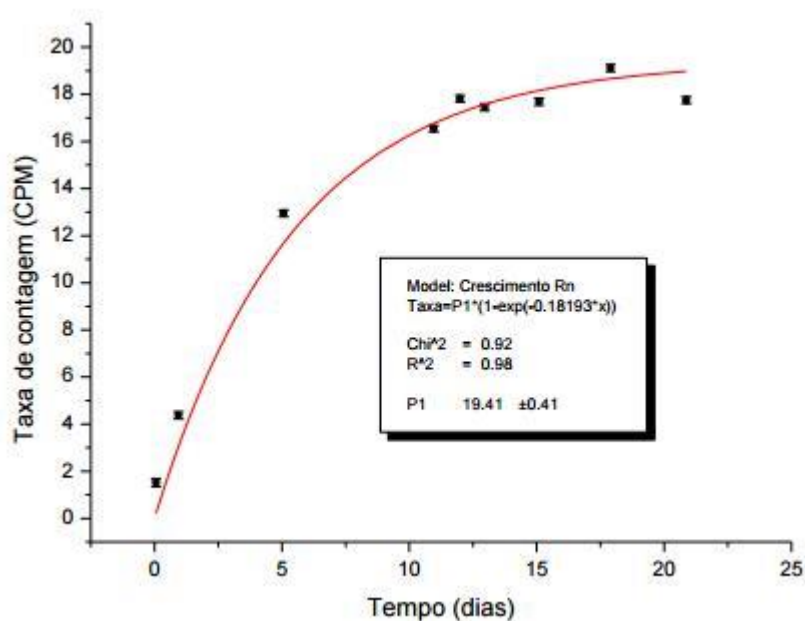
4.1 Radionuclídeos nas águas de poços

Os resultados das análises radiométricas foram compilados nessa secção, demonstrando a qualidade do procedimento analítico das análises e riscos associados à ingestão e inalação das águas de poços domésticos da RMR.

4.1.1 Curva de crescimento do Rn-222 e cálculo da eficiência

A partir da solução padrão de Ra-226 utilizada para o cálculo da eficiência de Rn-222, foram realizadas análises subsequentes durante 9 dias após a preparação das amostras. Com a médias das taxas de contagem ($n = 3$) subtraídas do branco analítico, obteve-se a curva de crescimento da concentração de atividade do Rn-222 ao longo do tempo (Figura 23).

Figura 23 - Curva de crescimento da atividade do Rn-222



Fonte: O autor.

A curva construída apresentou ótimo ajuste aos valores obtidos ($r^2 = 0,98$), bem como ao modelo teórico de crescimento de atividade do Rn-222, indicando coerência entre os valores esperados e obtidos. A taxa de contagem de saturação do Rn-222, ou seja, após ser estabelecido seu equilíbrio secular com o Ra-226, foi $19,81 \pm 0,41$ cpm. Utilizando este valor e a Equação 5, foi estimada em 78% a eficiência média para a determinação de Rn-222 por CLUBR. Este valor é semelhante ao encontrado na literatura e considerado aceitável para este tipo de determinação (SANTOS, 2010a).

4.1.2 Controle da qualidade do procedimento analítico

Os valores obtidos e de referência das amostras do Programa Nacional de Intercomparação organizado pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria - PNI/IRD estão na Tabela 7.

Tabela 7 - Valores obtidos e de referência para o controle da qualidade do procedimento analítico para a determinação de Rn-222 e Ra-226 em água

Data de referência	Amostra	Concentração de atividade* de Ra-226 em		Número E _n
		equilíbrio com Rn-222 (Bq L ⁻¹)		
		Valor obtido	Valor de referência	
12/02/2015	1	0,32 ± 0,18		-0,1
	2	0,39 ± 0,18	0,35 ± 0,05	0,2
	3	0,43 ± 0,19		0,3
03/07/2015	1	0,8 ± 0,2		-0,2
	2	0,9 ± 0,2	0,82 ± 0,12	0,2
	3	0,8 ± 0,2		0,0
25/03/2016	1	1,2 ± 0,3		-0,0
	2	1,1 ± 0,3	1,15 ± 0,17	-0,1
	3	1,0 ± 0,3		-0,4
20/06/2016	1	0,7 ± 0,2		-0,5
	2	0,7 ± 0,2	0,78 ± 0,12	-0,3
	3	0,7 ± 0,2		-0,4
16/01/2017	1	1,2 ± 0,3		-0,6
	2	1,1 ± 0,3	1,40 ± 0,21	-0,8
	3	1,2 ± 0,3		-0,5

*Média $\pm$ incerteza analítica expandida em nível de 95% de confiança

Fonte: O autor.

Todos os valores do Número E_n calculados encontraram-se entre -1 e 1 (ISO 13528, 2005), variando entre -0,85 e 0,39, o que garantiu a qualidade do procedimento analítico utilizado para as determinações em água por Espectrometria de Cintilação Líquida realizadas neste estudo.

4.1.3 Concentrações de Rn-222 e Ra-226

A Tabela 8 apresenta as concentrações de Rn-222 e Ra-226 nas amostras de água de poços obtidas utilizando a Espectrometria de Cintilação Líquida de Ultrabaixa Radiação de Fundo - CLUBR.

Tabela 8 - Resultados das análises por CLUBR nas amostras de águas de poços da Região do Fosforito Uranífero da RMR

Poço	Concentração (Bq L ⁻¹)			
	Rn-222		Ra-226 (Bq L ⁻¹)	
	Média	U	Média	U
AL01	74,0	± 1,5	<1	
AL02	7,6	± 0,6	<1	
AL03	25,0	± 1,0	<1	
AL04	29,0	± 1,0	<1	
AL05	52,0	± 1,4	<1	
PA01	<1		<1	
PA02	<1		<1	
PA03	1,3	± 0,4	<1	
PA04	1,0	± 0,4	<1	
PB01	46,0	± 1,4	<1	
PB02	42,0	± 1,4	2,7	± 0,5
PB03	35,0	± 1,3	2,7	± 0,5
PB04	76,0	± 1,8	4,3	± 0,6
PB05	33,0	± 1,3	<1	

U = incerteza analítica expandida em nível de 95% de confiança

Valores em negrito indicam concentração de atividade maior que o limite de 11,1 Bq L⁻¹, enquanto aqueles em itálico estão acima dos valores permissíveis (0,5 Bq l⁻¹)

Fonte: O autor.

Todas as amostras coletadas no Bairro de Pau Amarelo, município de Paulista, apresentaram valores de concentração de atividade de radônio muito abaixo do limite máximo de $11,1 \text{ Bq L}^{-1}$ estabelecido pela USEPA, em 1999, para águas para o consumo humano.

Em contrapartida, nos poços estudados dos bairros do Fosfato (Abreu e Lima), e de Paratibe (Paulista) as concentrações de atividade de radônio encontraram-se entre $7,6 \pm 0,6 \text{ Bq L}^{-1}$ e $74 \pm 1,5 \text{ Bq L}^{-1}$, com média de $42 \pm 4 \text{ Bq L}^{-1}$, e foram similares a algumas encontrados na literatura para outras regiões com radioatividade anômala no Brasil (Tabela 9) (BONOTTO; MELLO, 2006; CORRÊA, 2011; FIANCO, 2011). Além disso, apenas um poço dessas duas regiões apresentou valor dentro do limite estabelecido pela USEPA, sendo que todos os demais apresentaram valores acima de $11,1 \text{ Bq L}^{-1}$. Tal fato indica claramente a necessidade de maior atenção com relação ao uso dessas águas pela população local, devido aos riscos potenciais decorrentes da radiação presente.

Tabela 9 - Comparação entre os valores de concentração de atividade de Rn-222 encontrados nas regiões estudadas e os encontrados na literatura para outros locais no Brasil

Local	Concentração Rn-222 (Bq L^{-1})			Fonte
	Mínimo	Média	Máximo	
Fosfato	7,6	37	74	Este trabalho
Paratibe	33	46	76	
Pau Amarelo	< 0,8	-	1,3	
Catanduva - SP	0,04	-	27	Bonotto; Mello (2006)
Bocaina - SP	1,0	-	40	Bonotto; Mello (2006)
Novo Horizonte - SP	5,0	-	155	Bonotto; Mello (2006)
São José do Rio Preto - SP	6	-	11	Bonotto; Mello (2006)
Porto Alegre - RS	0	157	508	Fianco (2011)
Curitiba - PR	1,6	44	215	Corrêa et al. (2015)

Fonte: O autor.

Com relação ao Ra-226, entre todas as amostras analisadas apenas três poços pertencentes ao bairro de Paratibe apresentaram valores de concentração de atividade deste radionuclídeo acima do valor mínimo detectável ($> 1,0 \text{ Bq L}^{-1}$). Estes valores variaram entre $2,7 \pm 0,5$ e $4,3 \pm 0,6 \text{ Bq L}^{-1}$, ou seja, de 5 a 8 vezes acima do limite máximo permitido para atividade alfa total em águas que é de $0,5 \text{ Bq L}^{-1}$ (BRASIL, 2011). Desta forma, não é possível afirmar, a partir do presente estudo, que os poços do bairro do Fosfato e de Pau

Amarelo são seguros quanto aos níveis de Ra-226, devido às limitações da técnica utilizada. Entretanto, os três poços que apresentaram valores acima do limite máximo para alfa total em águas são um importante indicativo de que há risco à saúde da população da região do fosforito uranífero da RMR que consome as águas de poços dessas áreas quanto aos níveis desse radionuclídeo. Vale ressaltar que parâmetros físico-químicos da água podem ser bastante variáveis, recomendando-se a monitoração detalhada nesses poços.

4.1.4 Riscos associados à ingestão de Rn-222 na água

Altos teores de radônio em águas utilizadas para consumo contribuem para o aumento dos níveis deste radionuclídeo na atmosfera do interior de ambientes fechados, especialmente em locais de banho. Como os valores de concentração de Rn-222 nas águas de poços do Fosfato e de Paratibe estão acima do limite estabelecido pela USEPA, tem-se um indicativo da existência de risco potencial à saúde da população que utiliza a água dos poços dessas regiões associados à inalação do radônio proveniente das águas de poços (FARIAS et al., 2016; DUGGAL et al., 2015).

Mais ainda, o consumo direto de águas com altos teores de Rn-222 pode também contribuir para o aumento da dose efetiva anual recebida pela população, aumentando o risco à saúde associado ao radônio naquela região (MAFRA 2009; SANTOS, 2010a; RAVIKUMAR; SOMASHEKAR, 2018). Os valores médios de dose efetiva anual devido à ingestão de radônio foram calculados para cada região por faixa etária e estão apresentados nas Tabelas 10, 11 e 12 para cada bairro estudado.

Observou-se que, a partir da faixa etária dos 9 aos 13 anos de idade, os valores médios de dose efetiva anual associada à ingestão de águas contendo Rn-222 para o Bairro do Fosfato e de Paratibe encontraram-se até duas vezes acima do nível recomendado de dose efetiva para o ser humano a partir do consumo de água, que é de $0,1 \text{ mSv ano}^{-1}$ (EUROPEAN UNION, 1998; WHO, 2004). Assim, nessas duas regiões há significativa contribuição do Rn-222 nas águas de poços para o aumento da dose efetiva anual para suas populações e, consequentemente, aumento nos riscos à saúde dessas populações associados ao radônio (RAVIKUMAR; SOMASHEKAR, 2018).

Em contrapartida, as doses efetivas anuais médias associadas ao Rn-222 nas águas de poços utilizadas no bairro de Pau Amarelo encontraram-se duas ordens de grandeza abaixo do limite recomendado. Isso indica que, aparentemente, as águas de poços desta região não apresentam riscos à população quanto à ingestão de Rn-222 (RAVIKUMAR, SOMASHEKAR, 2018).

Tabela 10 - Dose efetiva anual associada à ingestão de radônio na água no Bairro do Fosfato, Município de Abreu e Lima

Faixa etária	Sexo	Dose efetiva (mSv ano ⁻¹)		
		Min	Média	Max
0-6 meses	-	0,007	0,033	0,066
7-12 meses	-	0,008	0,038	0,075
1-3 anos	-	0,013	0,062	0,086
4-8 anos	-	0,016	0,081	0,160
9-13 anos	M	0,023	0,115	0,226
	F	0,020	0,100	0,198
14-18 anos	M	0,032	0,158	0,311
	F	0,022	0,110	0,217
>18 anos	M	0,036	0,177	0,348
	F	0,026	0,129	0,254
Média geral			0,100	

Min = dose efetiva mínima

Max = dose efetiva máxima

Valores em negrito indicam dose efetiva maior que o limite de 0,1 mSv ano⁻¹

Fonte: O autor.

Tabela 11 - Dose efetiva anual associada à ingestão de radônio na água no Bairro de Pau Amarelo, Município do Paulista

Faixa etária	Sexo	Dose efetiva (mSv ano ⁻¹)		
		Min	Média	Max
0-6 meses	-	0,0003	0,0008	0,0011
7-12 meses	-	0,0004	0,0009	0,0013
1-3 anos	-	0,0006	0,0014	0,0021
4-8 anos	-	0,0008	0,0019	0,0028
9-13 anos	M	0,0011	0,0027	0,0039
	F	0,0010	0,0023	0,0034
14-18 anos	M	0,0015	0,0036	0,0054
	F	0,0010	0,0025	0,0037
>18 anos	M	0,0017	0,0041	0,0060
	F	0,0012	0,0030	0,0044
Média geral			0,0023	

Min = dose efetiva mínima

Max = dose efetiva máxima

Fonte: O autor.

Tabela 12 - Dose efetiva anual associada à ingestão de radônio na água no Bairro de Paratibe, Município do Paulista

Faixa etária	Sexo	Dose efetiva (mSv ano ⁻¹)		
		Min	Média	Max
0-6 meses	-	0,030	0,042	0,068
7-12 meses	-	0,034	0,047	0,078
1-3 anos	-	0,055	0,077	0,126
4-8 anos	-	0,072	0,101	0,165
9-13 anos	M	0,102	0,142	0,233
	F	0,089	0,125	0,204
14-18 anos	M	0,140	0,196	0,320
	F	0,098	0,136	0,223
>18 anos	M	0,157	0,219	0,359
	F	0,115	0,160	0,262
Média geral			0,125	

Min = dose efetiva mínima

Max = dose efetiva máxima

Valores em negrito indicam dose efetiva maior que o limite de 0,1 mSv ano⁻¹

Fonte: O autor.

4.2 Caracterização química e radiométrica dos solos

São apresentados nesta seção os resultados de todas as análises realizadas nas amostras de solos, da qualidade do procedimento analítico de tais análises, além dos valores calculados para a análise de riscos associados à presença dos radionuclídeos estudados nesses solos.

4.2.1 Caracterização química

A caracterização química dos solos foi realizada a partir da determinação da concentração de diferentes elementos químicos nas amostras de solo da região estudada por meio da técnica de EDXRF.

4.2.1.1 Garantia da qualidade do procedimento analítico

Os valores obtidos e certificados, suas respectivas incertezas expandidas em nível de 95% de confiança para os elementos químicos determinados nos materiais de referência SRM 2709 - *San Joaquin Soil* e IAEA SOIL-7 por EDXRF estão apresentados na Tabela 13.

Tabela 13 - Concentrações dos elementos químicos e suas respectivas incertezas analíticas expandidas (95%) determinadas nos materiais de referência certificados e os valores obtidos do Número E_n

SRM 2709 – San Joaquin Soil				
Analito	Valor obtido (mg kg ⁻¹)	Valor certificado (mg kg ⁻¹)	Número E_n	n*
Alumínio	77000 ± 2200	75000 ± 600	0,8	2
Estrôncio	226 ± 10	231 ± 1,7	-0,4	2
Ferro	34000 ± 450	35000 ± 1100	-0,8	2
Gálio	11,0 ± 1,0	14 ± 3	-0,9	2
Magnésio	14800 ± 2800	15100 ± 500	-0,1	2
Manganês	541 ± 50	538 ± 17	0,0	2
Potássio	20000 ± 620	20300 ± 60	-0,9	2
Silício	290000 ± 10000	296600 ± 2300	-0,5	2
Titânio	3500 ± 110	3420 ± 240	0,4	2
Vanádio	110 ± 19	112 ± 5	-0,1	2
Zinco	118 ± 13	106 ± 3	0,9	2
IAEA Soil-7				
Analito	Valor obtido (mg kg ⁻¹)	Valor certificado (mg kg ⁻¹)	Número E_n	n*
Alumínio	54000 ± 2000	47000 ± 7000	0,9	2
Chumbo	48 ± 7	60 ± 16	-0,6	2
Ferro	25000 ± 410	25700 ± 1100	-0,9	2
Estrôncio	94 ± 9	108 ± 11	-0,9	2
Gálio	9,0 ± 0,5	10 ± 4	-0,3	2
Magnésio	9900 ± 1300	11300 ± 800	-0,8	2
Manganês	582 ± 21	631 ± 46	-0,9	2
Potássio	14000 ± 600	12100 ± 1400	0,9	2
Silício	209000 ± 10000	180000 ± 32000	0,8	2
Titânio	2700 ± 92	3000 ± 1100	-0,2	2
Vanádio	58 ± 8	66 ± 14	-0,4	2
Zinco	90 ± 7	104 ± 12	-0,9	2

*n = número de repetições

Fonte: O autor.

Os valores obtidos para os materiais de referência foram utilizados para a avaliação da qualidade do procedimento analítico, que também foi realizada por meio do cálculo do

Número E_n . Todos os valores do Número E_n encontram-se no intervalo entre -1 e 1 (Tabela 13), variando entre -0,9 e 0,9, o que atesta a qualidade do procedimento analítico utilizado para a determinação das concentrações destes 12 elementos químicos nas amostras de solo em nível de 95% de confiança (ISO, 2005). Ao se considerar uma incerteza analítica expandida de 20% (valor máximo admitido para a maior parte dos elementos químicos constantes dos certificados de análise dos materiais de referência), os resultados mostraram-se satisfatórios. O elemento químico Pb só possui valor de referência passível de determinação por EDXRF para o material de referência IAEA Soil-7, por isso considerou-se apenas o valor obtido para esse material.

4.2.1.2 Elementos químicos nos solos

Os resultados de concentrações dos elementos químicos em mg kg^{-1} analisados por EDXRF nas amostras de solo estão apresentados na Tabela 14. Altas variações nas concentrações de alumínio, chumbo, estrôncio, ferro, potássio, vanádio e zinco foram observadas nos solos estudados em cada região, principalmente para os solos do Bairro Paratibe, o que indica a existência de diferentes tipos de solo no presente estudo.

Tabela 14 - Concentração dos elementos químicos (mg kg^{-1}) dos solos estudados

Analito	Fosfato – Abreu e Lima (n = 5)				Pau Amarelo (n = 4)				Paratibe (n = 5)			
	Min	M	Max	CV%	Min	M	Max	CV%	Min	M	Max	CV%
Alumínio	48700	76100	99100	30	28600	40500	57100	32	22200	62300	10900	66
Chumbo	16	24	32	24	15	19	23	21	21	28	39	30
Estrôncio	57	93	139	36	18	56	86	51	18	53	86	59
Ferro	11900	18000	22400	21	9340	11100	13100	16	8950	18800	33300	64
Gálio	10	11	12	7	10	10	11	4	10	11	12	13
Magnésio	4760	5390	5620	7	4920	5570	6290	11	4190	4960	5820	13
Manganês	102	118	141	15	116	141	173	20	120	151	175	13
Potássio	2920	3270	3620	10	3310	5970	8390	42	2650	5480	8360	51
Silício	296000	333000	378000	10	352000	375000	389000	4	256000	335000	41200	21
Titânio	2590	3670	4450	22	1850	2430	3140	25	1670	3080	4530	44
Vanádio	38	90	132	44	38	47	31	40	28	76	131	64
Zinco	32	42	50	21	22	46	72	49	32	48	71	33

Min = concentração mínima; Max = concentração máxima

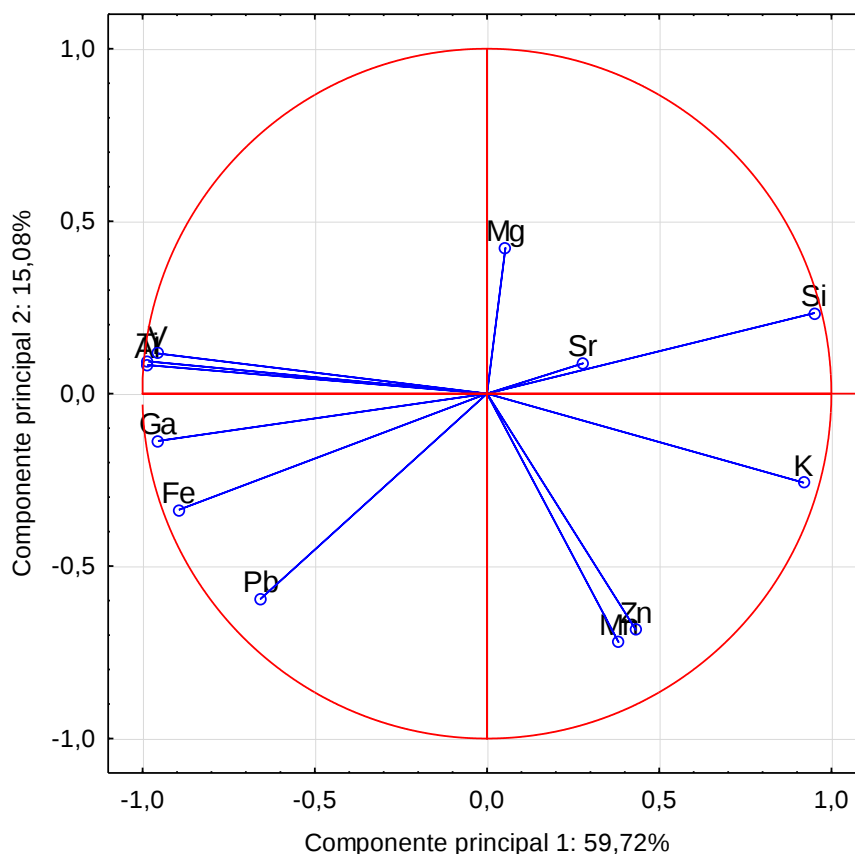
M = concentração média; CV% = coeficiente de variação em %

Fonte: O autor.

A Análise por Componentes Principais (PCA) foi empregada para verificar as correlações entre os elementos químicos por meio das componentes principais 1 e 2. Após a normalização dos dados com a utilização do teste Shapiro-Wilk, foi necessária a transformação dos dados (raiz décima primeira). Com a conseguinte padronização (média igual a 0 e a variância igual a 1), realizou-se a PCA utilizando o software STATISTICA (STATSOFT, 2004). Como resultado, a Componente Principal 1 explicou 59,72% da variância total, enquanto a Componente Principal 2 refletiu apenas 15,08%. Para essa análise, foram escolhidas duas componentes principais que levaram a explicação de 74,8% da variância total dos dados.

Na Figura 24 estão representadas as relações entre as componentes principais 1 e 2, demonstrando a associação entre os elementos químicos quantificados nos solos das regiões estudadas. De acordo com a análise, grupos de elementos químicos foram identificados como elementos químicos associados à fração argilosa dos solos, como Al, Ti, V, Ga, Fe e Pb, elementos químicos possivelmente associados a impactos antropogênicos como Mn e Zn, além de elementos químicos associados à fração areia tais como K e Si. Os elementos químicos Mg e Sr foram fracamente explicados pela PCA (Figura 24).

Figura 24 - Agrupamentos das variáveis a partir da Análise por Componentes Principais

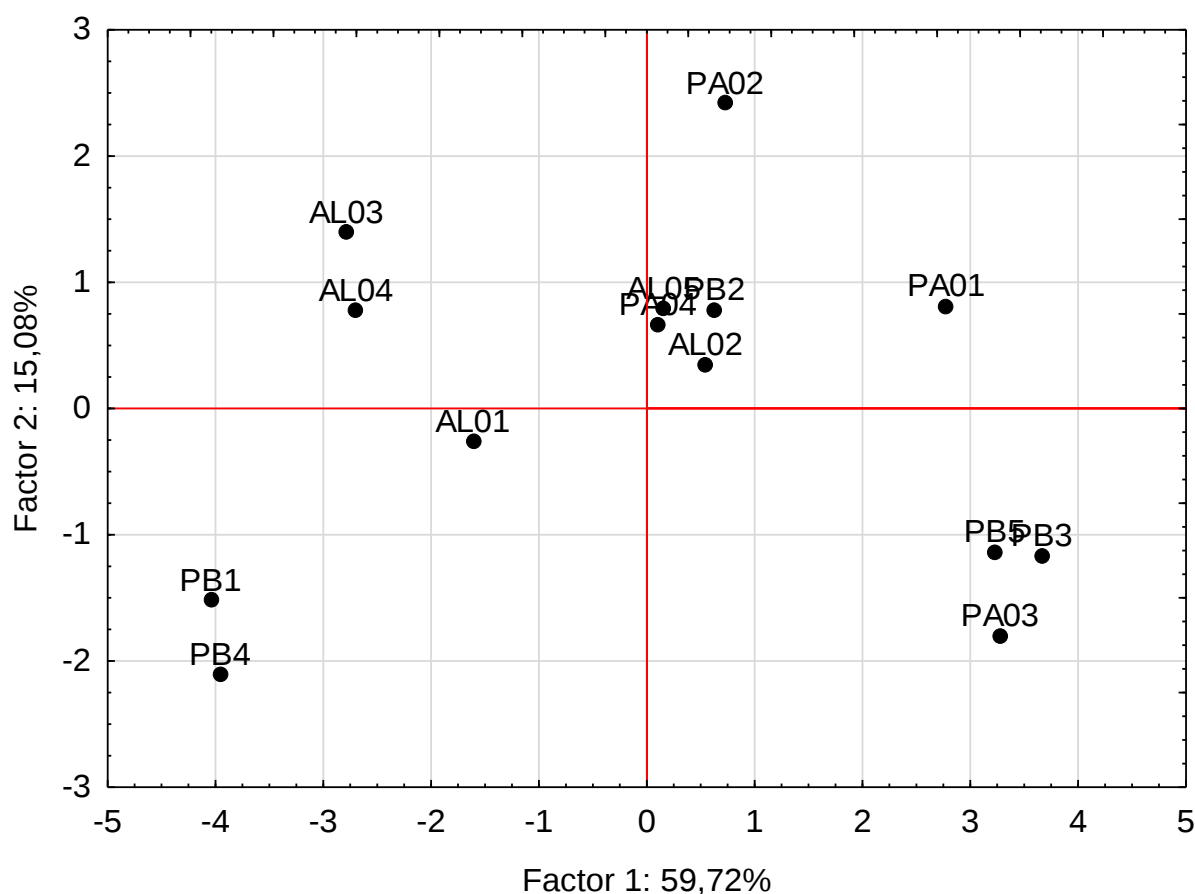


Fonte: O autor.

A Figura 25 apresenta os valores das componentes principais 1 e 2 para cada amostra de solo analisada, permitindo estabelecer os agrupamentos entre os solos das regiões estudadas. De acordo com a análise, observou-se a clara existência de variabilidade entre os tipos de solos que foram estudados. Evidenciou-se agrupamento entre os solos dos pontos PB01 e PB04, do bairro de Paratibe, relacionado principalmente com a alta concentração de Pb. Outro agrupamento visível foi o dos solos dos pontos PB03, PB05 (Paratibe) e PA03 (Pau Amarelo) relacionado ao grupo de elementos químicos K-Si. De maneira semelhante, os solos dos pontos AL02, AL05 (Abreu e Lima), PA02, PA04 (Pau Amarelo) e PB02 (Paratibe), foram agrupados mais ao centro do gráfico. Esta variabilidade de tipo de solos estudados, inclusive entre solos de um mesmo bairro, pode explicar possíveis variabilidades nos resultados das determinações radiométricas dos solos analisados neste estudo.

Figura 25 - Agrupamentos dos solos a partir da Análise por Componentes Principais.

AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe. Números indicam as diferentes amostras analisadas em cada bairro.

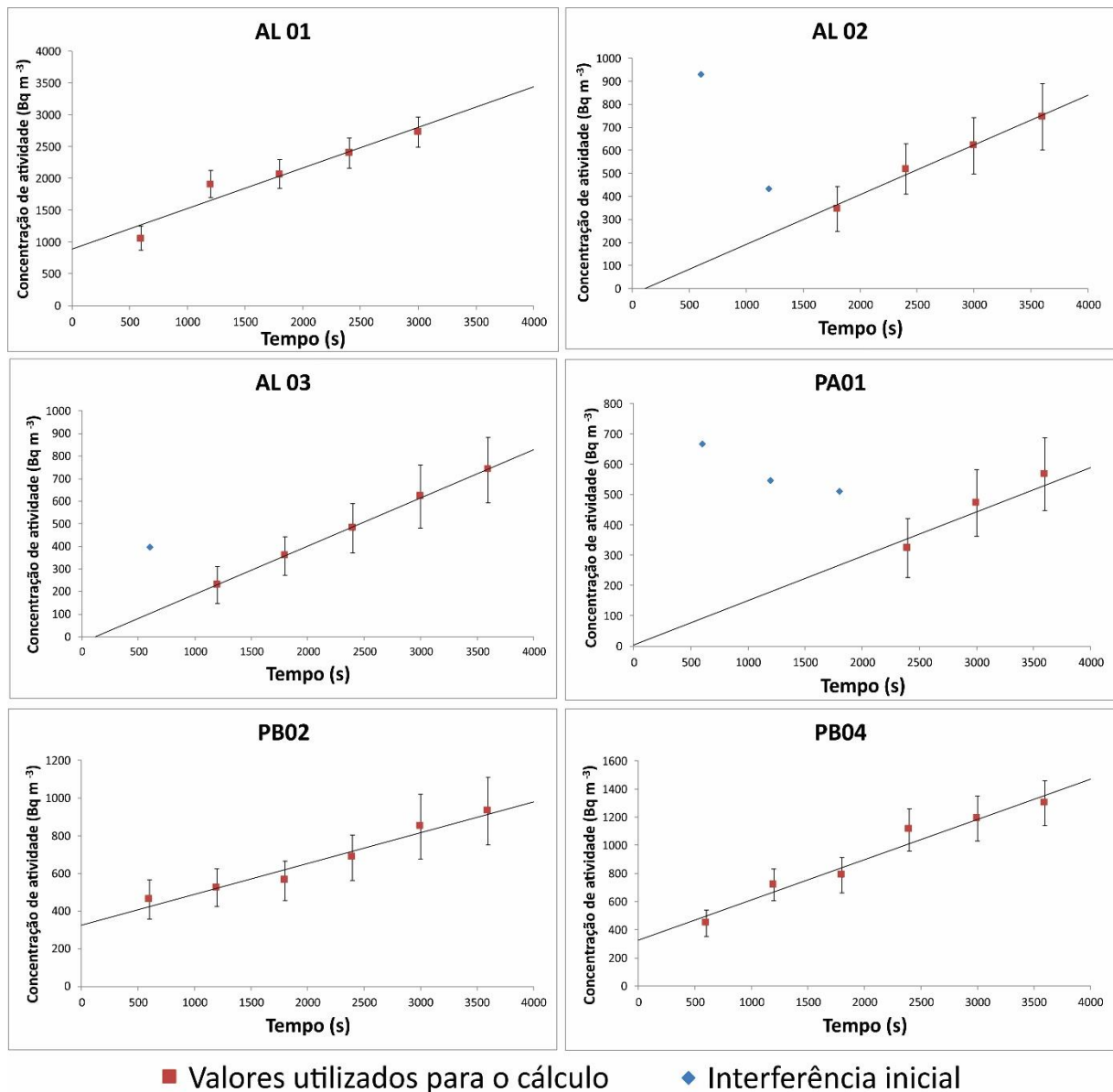


Fonte: O autor.

4.2.2 Taxa de exalação superficial do Rn-222

Para os cálculos das taxas de exalação de superfície (E) de Rn-222 dos solos estudados, foram construídas curvas das relações entre a concentração de atividade do Rn-222 medida e o tempo para cada local analisado (Figura 26).

Figura 26 - Curvas utilizadas para os cálculos das taxas de exalação de Rn-222 de cada solo estudado. AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe



Fonte: O autor.

Foi observada clara dependência linear entre a concentração de atividade de Rn-222 e o tempo de medição. Porém, para os resultados dos pontos AL02, AL03 e PA01, foram necessários testes dos dados a partir de um modelo de regressão linear em nível de 95 % de

confiança. Nos resultados obtidos nestes três pontos foi observada uma variação atípica dos valores obtidos no início das medições (Figura 23), causando um decréscimo dos valores da atividade ao longo do tempo até determinado momento da análise. A partir de 1000 segundos, os valores de concentração de atividade passam a crescer ao longo do tempo, tornando possível o cálculo das taxas de exalação de superfície do Rn-222. Esse comportamento pode ter sido causado pela presença significativa de Rn-220 no gás desses solos, assim, uma vez que o equipamento utilizado não é capaz de distinguir a energia das partículas alfa incidentes, no início das medições, o Rn-220 (que possui meia-vida curta) é detectado sem diferenciação com relação ao Rn-222. Devido a essa interferência, para o cálculo das taxas de exalação nesses três pontos foram utilizados os dados obtidos apenas após a clara definição da regressão linear entre a concentração de atividade do radônio e o tempo de medição, ou seja, após o tempo necessário para que a interferência, se houvesse, fosse desprezível (Figura 26). Este procedimento garantiu a qualidade dos resultados obtidos.

A Tabela 15 apresenta os valores dos coeficientes angulares das curvas, os coeficientes de determinação (r^2) destas curvas e os valores das taxas de exalação superficial de Rn-222 calculadas a partir da Equação 8. Estes valores variaram de 24 a 103 $\text{mBq m}^{-2} \text{s}^{-1}$, cujo coeficiente de variação atingiu 66%, inclusive entre locais pertencentes a um mesmo bairro.

Tabela 15 – Taxas de exalação de superfície de Rn-222 do solo dos locais de estudo.

AL = Fوسفato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe

Ponto de amostragem	Coeficiente de determinação (R^2)	Coeficiente angular da curva	Taxa de exalação ($\text{mBq m}^{-2} \text{s}^{-1}$)
AL01	0,93	0,64	$102,9 \pm 19,7$
AL02	0,98	0,22	$34,7 \pm 4,2$
AL03	0,99	0,21	$34,4 \pm 5,0$
PA01	0,89	0,15	$23,6 \pm 4,1$
PB02	0,96	0,16	$26,3 \pm 4,7$
PB04	0,96	0,27	$46,1 \pm 6,8$

Fonte: O autor

Os valores encontrados em todos os bairros estudados foram, em média, maiores do que os encontrados na literatura para diferentes regiões do mundo, inclusive em áreas com ocorrências uraníferas (Tabela 16). O ponto de maior taxa de exalação e, por consequência, maior preocupação quanto à radioproteção, encontra-se próximo a um local de acumulação de

rejeitos da antiga mineração de fosfato que ocorria nesta região do Município de Abreu e Lima (AL01). Tais valores atingiram até 4 ordens de grandeza maiores do que aqueles encontrados em áreas de Punjab, na Índia, por exemplo.

Tabela 16 - Comparação entre valores de taxa de exalação de Rn-222 da região estudada e valores da literatura

Local	Taxa de exalação (mBq m ⁻² s ⁻¹)			Fonte
	Mínimo	Média	Máximo	
Fosfato	34	57	103	Este trabalho
Paratibe	26	36	46	
Pau Amarelo	-	24	-	
Refúgio Charles Darwin, Igarassu (Brasil)	13,5	16,8	20,0	Farias et al. (2016)
Ravne Fault (Eslovênia)	1,1	12,2	41,9	Vaupotic et al. (2010)
Tessalonica (Grécia)	6,2	7,4	8,7	Clouvas et al. (2017)
Norte do Rajastão (Índia)	0,076	0,14	0,21	Duggal et al. (2015)
Punjab (Índia)	0,0029	0,0085	0,019	Mehta et al. (2015)
Himachal Pradesh (Índia)	0,011	0,017	0,023	Bala et al. (2017)
Haryana (Índia)	0,050	0,073	0,11	Singh et al. (2017)

Fonte: O autor.

Portanto, há um indicativo de que, se a circulação de ar no interior das residências da região do fosforito uranífero da RMR não for adequada, podem ocorrer elevadas concentrações de atividade de Rn-222 na atmosfera desses ambientes fechados. Tal fato aumentaria riscos à saúde da população da região de estudo devido à inalação do radônio, o que ressalta a necessidade da monitoração da concentração deste radionuclídeo no interior dessas residências a fim de uma avaliação mais detalhada desses riscos. Além disso, deve ser estudada a contribuição do Ra-226 originalmente contido no solo para a taxa de exalação de Rn-222 para fins de mitigação, se for o caso.

4.2.3 Radionuclídeos naturais nos solos

Os resultados das quantificações dos radionuclídeos naturais de interesse nas amostras dos solos estudados, obtidos utilizando a técnica EGAR, são apresentados nesta seção. Também são apresentados os valores dos parâmetros calculados para a avaliação dos riscos associados à presença desses radionuclídeos nos solos analisados.

4.2.3.1 Garantia da qualidade do procedimento analítico

Os valores obtidos e certificados e suas respectivas incertezas expandidas em nível de 95% de confiança para os radionuclídeos naturais quantificados no padrão de solo do PNI/IRD e no material de referência IAEA 314 são apresentados na Tabela 17. Também são apresentados os valores de Número E_n , que foram utilizados como o parâmetro para a garantia da qualidade deste procedimento analítico.

Tabela 17 - Valores obtidos e certificados e suas respectivas incertezas expandidas em nível de 95% de confiança para os radionuclídeos naturais quantificados no padrão de solo do PNI/IRD e no material de referência IAEA 314

Radionuclídeo	Padrão de solo do PNI/IRD							
	Valor obtido			Valor certificado			Número E _n	n*
	(Bq kg ⁻¹)			(Bq kg ⁻¹)				
K-40	353	±	36	396	±	69	-0,6	2
Pb-212	44	±	3	47	±	8,1	-0,3	2
Ac-228	44	±	16	48	±	8,3	-0,7	2

Radionuclídeo	IAEA – 314 Soil Stream							
	Valor obtido			Valor certificado			E _n	N*
Ra-226	707	±	24	709	±	10	-0,48	4

*n = número de repetições

Fonte: O autor.

Os valores do Número E_n para os radionuclídeos de interesse do padrão interno e do material de referência estiveram todos dentro do intervalo entre -1 e 1. Dessa forma, foi atestada a qualidade analítica do método utilizado para a determinação das concentrações de atividade de Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos estudados em nível de 95% de confiança (ISO, 2005).

4.2.3.2 Níveis de Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos

Utilizando-se da técnica EGAR, as concentrações de atividade de Ra-226, Ra-228 e K-40 foram determinadas nos solos estudados (Tabela 18), assim como foram estimadas as incertezas analíticas expandidas em nível de 95% de confiança.

Tabela 18 - Concentrações de atividade e incertezas analíticas expandidas em nível de 95% de confiança dos radionuclídeos estudados nos solos.

Solo	Ra-226 (Bq kg ⁻¹)	Ra-228 (Bq kg ⁻¹)	K-40 (Bq kg ⁻¹)
AL 01	114 ± 7	55 ± 3	25 ± 7
AL 02	127 ± 13	39 ± 3	27 ± 7
AL 03	91 ± 6	66 ± 3	50 ± 12
AL 04	98 ± 6	65 ± 3	41 ± 11
AL 05	102 ± 6	41 ± 3	< 10
PA 01	< 10	13,7 ± 1,8	118 ± 6
PA 02	< 10	26 ± 2	49 ± 5
PA 03	< 10	26 ± 2	98 ± 10
PA 04	< 10	19 ± 4	119 ± 5
PB 01	17 ± 4	54 ± 4	36 ± 7
PB 02	< 10	15 ± 2	9,6 ± 1,0
PB 03	< 10	14 ± 2	12 ± 3
PB 04	< 10	47 ± 3	15 ± 5
PB 05	< 10	19,6 ± 1,8	6 ± 2

AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe. Números subsequentes indicam as diferentes unidades amostrais.

Valores em negrito indicam altas concentrações de atividade (acima da média mundial de 35 Bq kg⁻¹)

Fonte: O autor.

As concentrações de atividade de Ra-226 nos solos analisados da Região do Fosforito Uranífero da RMR variaram entre valores menores que 10 Bq kg⁻¹ até 127 Bq kg⁻¹. Os maiores valores foram observados no bairro do Fosfato, em Abreu e Lima, com média de 106 Bq kg⁻¹, ou seja, cerca de 3 vezes acima da média mundial de 35 Bq kg⁻¹. Já nos dois bairros estudados do Município de Paulista, os valores encontrados foram, em sua maioria, abaixo do limite de detecção. Assim, os valores de atividade de Ra-226 nos solos estudados desse município estão abaixo da média mundial, o que indica menores riscos à saúde associados ao Ra-226 nos solos da região (DUGGAL et al., 2015; PAIVA et al., 2015).

Os valores de concentração de atividade de Ra-228 nos solos da região de estudo variaram de 13,7 ± 1,8 a 66 ± 3 Bq kg⁻¹. Os menores valores foram encontrados nos solos do bairro de Pau Amarelo, cujo valor médio (21 ± 2 Bq kg⁻¹) encontra-se abaixo da média mundial do valor para Th-232 (considerada igual à do Ra-228 no equilíbrio secular), que é

25 Bq kg⁻¹. Em contrapartida, os valores médios encontrados para os solos dos bairros do Fوسفato e de Paratibe foram maiores do que a média mundial, 53 ± 3 Bq kg⁻¹ e 30 ± 2 Bq kg⁻¹, respectivamente (PAIVA et al., 2016).

Com relação aos resultados de concentração de atividade de K-40 para os solos da região de estudo, todos eles apresentaram-se pelo menos 3 vezes abaixo da média mundial para solos de 370 Bq kg⁻¹ (MCAULAY; MORAN, 1998). Este fato indica que o K-40 tem pouca contribuição para a dose à qual a população está exposta.

4.2.3.3 Riscos associados ao Ra-226, Ra-228 e K-40 no solo

Com relação à radioproteção, os valores de atividade equivalente de rádio (Ra_{eq}), além dos índices gama (I_γ) e alfa (I_α) de cada solo estudado são apresentados na Tabela 19. Esses valores são definitivamente importantes para a classificação do uso desses solos pela população, principalmente para a construção civil.

Tabela 19 - Valores de equivalente de rádio (Ra_{eq}), índices gama (I_γ) e alfa (I_α) e suas respectivas incertezas analíticas em nível de 95% de confiança nos solos estudados.

Solo	Ra _{eq} (Bq kg ⁻¹)	I _γ	I _α
AL 01	198 ± 26	0,39 ± 0,04	0,57 ± 0,03
AL 02	184 ± 15	0,43 ± 0,06	0,63 ± 0,06
AL 03	189 ± 14	0,32 ± 0,04	0,45 ± 0,03
AL 04	193 ± 13	0,34 ± 0,04	0,49 ± 0,03
AL 05	161 ± 6	0,34 ± 0,03	0,51 ± 0,03
PA 01	<39	<0,14	<0,05
PA 02	<51	<0,18	<0,05
PA 03	<38	<0,16	<0,05
PA 04	<46	<0,17	<0,05
PB 01	98 ± 9	0,34 ± 0,03	0,09 ± 0,02
PB 02	<32	<0,11	<0,05
PB 03	<30	<0,10	<0,05
PB 04	<78	<0,27	<0,05
PB 05	<38	<0,13	<0,05

AL = Fوسفato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe. Números subsequentes indicam as diferentes unidades amostrais.

Fonte: O autor.

Os valores de atividade equivalente de rádio de todos os solos analisados apresentaram-se pelo menos 2 vezes abaixo do valor máximo recomendado para materiais de construção de 370 Bq kg^{-1} , o que equivaleria a uma dose externa de $1,5 \text{ mSv ano}^{-1}$ (NEA-OECD, 1979). Desta forma, considera-se que os solos das regiões estudadas são seguros para o uso em materiais de construção. Isto é de importância para a população da região uma vez que residências construídas com tijolos de barro e casas de taipa são comuns nos bairros estudados.

Da mesma forma, todos os valores calculados para o índice gama e o índice alfa apresentaram-se abaixo do recomendado pela European Commission ($I_\gamma \leq 1$; $I_\alpha \leq 1$). Apesar disso, os valores encontrados para as amostras do Bairro do Fosfato são claramente superiores aos das outras duas regiões com cerca de 2 vezes para o I_γ e, ao menos, 10 vezes para o I_α . Estes resultados indicaram que, possivelmente, com relação aos níveis destes radionuclídeos naturais (Ra-226, Ra-228 e K-40), os solos dessa região são seguros para a população que habita esses locais, mas é necessária uma maior atenção com relação à monitoração dos níveis desses radionuclídeos no Bairro do Fosfato – Abreu e Lima. Para uma melhor avaliação dos riscos, foram calculados os valores das taxas de dose absorvida gama (D) e de dose efetiva anual (E) conforme mostra a Tabela 18, ambas decorrentes de Ra-226, Ra-228 e K-40 presentes nos solos.

Os valores de taxa de dose absorvida gama de todos os solos do município de Abreu e Lima analisados encontram-se em torno de 1,5 vez acima da média para a crosta terrestre de acordo com o relatório da UNSCEAR de 2000 (55 nGy h^{-1}), enquanto os valores encontrados para os solos do município de Paulista encontram-se todos abaixo da média mundial. Levando em conta este parâmetro, há um indicativo de que os solos de Abreu e Lima estudados apresentam, sim, risco à saúde da população daquela região, enquanto os solos de Paulista analisados são seguros quanto aos radionuclídeos naturais.

Tabela 20 - Valores de taxa de dose absorvida gama (D), dose efetiva anual (E) e suas respectivas incertezas analíticas expandidas (95%) utilizados para análise dos riscos associados ao Ra-226, Ra-228 e K-40 nos solos estudados.

Solo	D (nGy h ⁻¹)	E (mSv ano ⁻¹)
AL 01	88 ± 5	0,54 ± 0,03
AL 02	84 ± 8	0,51 ± 0,05
AL 03	85 ± 5	0,52 ± 0,03
AL 04	87 ± 5	0,53 ± 0,03
AL 05	73 ± 4	0,45 ± 0,02
PA 01	< 18	< 0,11
PA 02	< 23	< 0,14
PA 03	< 4	< 0,02
PA 04	< 21	< 0,13
PB 01	43 ± 4	0,30 ± 0,03
PB 02	< 15	< 0,09
PB 03	< 13	< 0,08
PB 04	< 35	< 0,21
PB 05	< 17	< 0,10

AL = Fosfato – Abreu e Lima. PA = Pau Amarelo. PB = Paratibe. Números subsequentes indicam as diferentes unidades amostrais.

Fonte: O autor.

Além disso, os valores de dose efetiva anual para pessoas adultas apresentaram-se para todos os locais de estudo abaixo de 1 mSv ano⁻¹, valor recomendado pela European Commission, em relatório de 1999. Porém, deve-se levar em consideração que esta não é a única fonte de radiação que contribui para dose efetiva anual para a população daquela região. Dessa forma, se levar em conta também a contribuição de outras fontes de radiação, como o Rn-222 presente na água utilizada por essa população, por exemplo, a dose pode superar o limite máximo de 1 mSv ano⁻¹.

5. CONCLUSÕES

A partir das determinações realizadas nas águas de poços e solos da região do fosforito uranífero da Região Metropolitana do Recife, conclui-se que:

1. As quantificações de Rn-222 em águas de cacimbas do Fosfato (Abreu e Lima) e de Paratibe (Paulista) indicaram a existência de um possível risco à saúde da população que utiliza e consome águas da região do fosforito uranífero da RMR.
2. A comprovação de risco foi baseada no fato dos valores de dose efetiva anual devido à ingestão das águas dos poços dessas áreas para pessoas acima dos 9 anos serem até 2 vezes maiores do que os limites estabelecidos.
3. Os resultados de concentrações de atividade de Ra-226 em alguns poços de Paratibe (Paulista) indicam possibilidade de risco à saúde dessa população também quanto a este radionuclídeo, o que reforça a necessidade de atenção quanto ao uso dessas águas.
4. Com relação aos solos, as concentrações de atividade de Ra-226 e Ra-228 das regiões do Fosfato (Abreu e Lima) e Paratibe (Paulista) indicam necessidade de atenção com relação ao uso dos solos da região do fosforito uranífero da RMR.
5. A contribuição de K-40 para o aumento do risco à saúde das populações das regiões estudadas pode ser considerada dentro da esperada, não necessitando de maior atenção com relação à sua presença nesses solos.
6. A taxa de dose absorvida gama devido à presença de radionuclídeos naturais foi maior do que a média mundial apenas nos solos da região do Fosfato (Abreu e Lima). Além disso, a contribuição média para a dose efetiva anual associada à presença de radionuclídeos naturais nos solos também foi maior nesta região.
7. Os valores de taxa de exalação de Rn-222 foram de 2 até 6000 vezes maiores do que os valores encontrados na literatura em todas as regiões estudadas, indicando a existência de risco potencial à saúde da população da região do fosforito uranífero como um todo associado ao Rn-222 no solo.
8. O somatório de todas as fontes de exposição à radiação nessas áreas urbanas pode ultrapassar o limite máximo de 1 mSv ano^{-1} , o que confirma a necessidade da monitoração radiométrica das regiões estudadas.

6 PERSPECTIVAS PARA TRABALHOS FUTUROS

Como possibilidade para futuros trabalhos pode-se ressaltar:

- levantamento nacional das concentrações de radônio em águas de poços, solos e ambientes fechados para viabilizar a elaboração de mapas de radônio, como já foi feito em outros países, como nos Estados Unidos;
- disponibilização de banco de dados para o estudo dos efeitos da exposição ao radônio e radionuclídeos associados sobre a saúde humana;
- monitoração de radônio nas residências, principalmente daquelas localizadas sobre afloramentos de rochas contendo altas concentrações de atividade de radionuclídeos naturais;
- avaliação da contribuição do Rn-222 presente nas águas de poços utilizadas no banho para o aumento da dose à radiação ionizante à qual a população da região do fosforito uranífero da RMR está exposta.

REFERÊNCIAS

- ALLEN-PRICE, E. D. Uneven distribution of cancer in West Devon with particular reference to the divers water supplies. **Lancet**, v. 275, p. 1235-1238, 1960.
- AMARAL, E. C. S. **Modificação da exposição à radiação natural devido a atividades agrícolas e industriais numa área de radioatividade natural elevada no Brasil**. Tese de Doutorado. Rio de Janeiro: Instituto de Biofísica/UFRJ, 1992.
- ASTM, **Standard methods for the examination of water and wastewater**. Washington: American Society for Testing and Materials, 1998. 541 p.
- BALA, P.; KUMAR, V.; MEHRA, R. Measurement of radon exhalation rate in various building materials and soil samples. **Journal of Earth System Science**, v. 126, p. 31-38, 2017.
- BAUDRON, P.; COCKENPOT, S.; LOPEZ-CASTEJON, F. RADA KOVITCH, O.; GILABERT, J.; MAYER, A.; GARCIA-AROSTEGUI, J. L.; MARTINEZ-VICENTE, D.; LEDUC, C.; CLAUDE, C. Combining radon, short-lived radium isotopes and hydrodynamic modeling to assess submarine groundwater discharge from an anthropized semiarid watershed to a Mediterranean lagoon (Mar Menor, SE Spain). **Journal of Hydrology**, v. 525, p. 55-71, 2015.
- BONOTTO, D. M.; **Radioatividade nas águas, da Inglaterra ao Guarani**. São Paulo: Editora UNESP, 2004. 251 p.
- BONOTTO, D. M., MELLO, C. B. A combined method for evaluating radon and progeny in waters and its use at Guarani aquifer, São Paulo State, Brazil. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 86, p. 337-353, 2006.
- BRASIL. **Portaria nº 2914 de 12/12/2011**. Brasília: Ministério da Saúde, 2011. Disponível em: http://bvsmms.saude.gov.br/bvs/saudelegis/gm/2011/prt2914_12_12_2011.html
Acessado em: 06/02/2017.
- CANBERRA. **Genie 2000 2.3**. Meriden: Canberra, 2009.
- CLOUVAS, A.; LEONTARIS, F.; XANTHOS, S.; ALIFRAGIS, D. Radon migration in soil and its relation to terrestrial gamma radiation in different locations of the Greek early warning system network. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 175, p 124-133, 2017.

CNEN. **Diretrizes básicas de proteção radiológica**. Rio de Janeiro: Norma CNEN, n 3.01 2005. Disponível em: <<http://www.abfm.org.br/upload/normas/norma12.pdf>> Acessado em: 02/12/2016.

CORRÊA, J. N. **Avaliação da concentração de radônio em ambientes de convívio humano na região metropolitana de Curitiba**. Dissertação de Mestrado. Curitiba: PPGEM/UFTPR, 2006, 59 p.

CORRÊA, J. N. **Avaliação dos níveis de concentração de radônio em ambientes e águas de poços no estado do Paraná**. Tese de Doutorado. Curitiba: PPGEM/UFTPR, 2011, 111 p.

CORRÊA, J. N.; PASCHUK, S. A.; KAPPE, J.; DENYAK, V.; SCHELIN, H. R.; DEL CLARO, F.; PERNA, A. F. N.; REQUE, M.; ROCHA, Z.; SANTOS, T. O. Monitoramento da radioatividade alfa relacionada ao radônio-222 em águas de poços da região metropolitana de Curitiba (PR). **Engenharia Sanitária Ambiental**, v. 20, p. 243-250, 2015.

DESOUKY, O.; DING, N.; ZHOU, G. Targeted and non-targeted effects of ionizing radiation. **Journal of Radiation Research and Applied Sciences**, v. 8, p. 247-254, 2015.

DUGGAL, V. MEHRA, R.; RANI, A. Study of radium and radon exhalation rate in soil samples from areas of Northern Rajasthan. **Journal Geological Society of India**, v. 86, p. 331-336, 2015.

DUGGAL, V.; RANI, A.; BALARAM, V. Assessment of age-dependent radiation dose due to intake of uranium and thorium in drinking water from Sikar district, Rajasthan, India. **Radiation Protection Dosimetry**, v. 171, p. 257-261, 2016.

ELMAGD, M. A.; DAIF, M. M.; EISSA, H. M. Cytogenetic effects of radon inhalation. **Radiation Measurements**, v. 43, p. 1265-1269, 2008.

EPA. Radon in drinking water health risk reduction and cost analysis. **Notice, Federal Register**, v. 64, 129 p. 1999.

EPA. **Radon**. Environmental Protection Agency, Indoor Environmental Division. Estados Unidos, 2015. Disponível em: <<http://www.epa.gov/radiation/radionuclides/radon.html>>. Acessado em: 02/08/2017.

EUROPEAN COMMISSION. Report on radiological protection principle concerning the natural radioactivity of building materials. **Radiation Protection (Directorate-General Environment, Nuclear Safety and Civil Protection)**, European Commission, 1999.

EUROPEAN UNION. European drinking water council directive 98/83/EC of 3rd November 1998 on the quality of water intended for human consumption. **Official Journal of European Communities**, n. 41, p. 32-54, 1998.

FARIAS, E. E. G. **Exalação de radônio-222 em solos: parâmetros para modelagem e métodos de determinação**. Tese de Doutorado. Recife: PROTEN/UFPE, 2016, 126 p.

FARIAS, E. E. G.; SILVA NETO, P. C.; SOUZA, E. M.; FRANÇA, E. J. D.; HAZIN, C. A. Radon levels and transport parameters in atlantic forest soils. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 307, p. 811-815, 2016.

FERNANDEZ, Z. H.; SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; ALVAREZ, J. R. E.; SILVA, E. B.; FRANÇA, E. J.; MENEZES, R. S. C.; FARIAS, E. E. G.; SANTOS, J. M. N. EDXRF as an alternative method for multielement analysis of tropical soils and sediments. **Environmental Monitoring and Assessment**, v. 189, p. 447-455, 2017.

FIANCO, A. C. B. **Concentrações de radônio nas águas subterrâneas, rochas e solos de Porto Alegre – RS**. Dissertação de Mestrado. Porto Alegre: UFRGS, 2011. 99 p.

FONSECA, M. R. M. **Química: físico-química**. São Paulo: FTD, 1992. 343 p.

GERALDO, L. P.; SANTOS, V.; MARQUES, A. L.; BOTARI, A. Medidas dos níveis de radônio em diferentes tipos de ambientes internos na região da Baixada Santista-SP. **Radiologia Brasileira**, v. 38, p. 283-286, 2005.

GOOGLE LLC. **Google Earth Pro**. Mountain View, USA: Google LLC. 2015.

GRAVES, B. **Radon in ground waters**. New Jersey: Lewis Publishers, 1987. 546 p.

HALLIDAY, D.; RESNICK, R.; KRANE, K. S. **Physics**. Rio de Janeiro: Editora Livros Técnicos e Científicos (LTC), John Wiley & Sons, 2004. 392 p.

HASHIMOTO, Y. R. **Avaliação da concentração de radônio em casas pré-fabricadas e determinação da camada emissora de radônio em argamassa de cimento**. Dissertação de Mestrado. Curitiba: PPGEEI/UFTPR, 2017, 107 p.

ICRP. **Protection against radon-222 at home and at work: ICRP Publication 65**, Oxford: Pergamon Press, 1993. 45 p.

ICRP. Protection of the public in situation of prolonged radiation exposure. **ICRP Publication**, Oxford, New York: Pergamum Press, n. 82, 1999.

INSTITUTE OF MEDICINE OF THE NATIONAL ACADEMIES. **Dietary reference intakes for water, potassium, sodium, chloride and sulfate**. Washington, D.C.: The National Academies Press, 2005. 618 p.

ISO - INTERNATIONAL ORGANIZATION FOR STANDARDIZATION. **Statistical methods for use in proficiency testing by interlaboratory comparisons**. Geneva: ISO, N. 13528, 2005. 66 p.

KIM, S. H.; HWANG, W. J.; CHO, J. S.; KANG, D. R. Attributable risk of lung cancer deaths due to indoor radon exposure. **Annals of Occupational and Environmental Medicine**, v. 28, p. 1-7, 2016.

LIMA, R. A. **Avaliação da dose na população da região urano-fosfática do Nordeste que utiliza recursos hídricos da região**. Tese de Doutorado. São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 1996, 187 p.

MAFRA, K. C. **Medidas de concentração de radônio-222 em água de poço e solo da região do Pinheirinho em Curitiba e proposta de mitigação da água**. Dissertação de Mestrado. Curitiba: UTFPR, 2009, 102 p.

MCAULAY, I. R.; MORAN, D. Natural radioactivity in soil in the Republic of Ireland. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 24, p. 47-49, 1998.

MEHTA, V.; SINGH, T. P.; CHAUHAN, R. P.; MUDAHAR, G. S. Radon exhalation rates from some soil samples of Kharar, Punjab. **Advanced Materials and Radiation Physics**, v. 1675, p. 1-3, 2015.

MELO, V. P. **Avaliação da concentração do ^{222}Rn nos ambientes internos e externos de residências do município de Monte Alegre, PA**. Tese de Doutorado. Rio de Janeiro: Instituto de Biofísica/UFRJ, 1999. 133 p.

MELQUIADES, F. L.; MELQUIADES, R. A.; Radioatividade natural em amostras alimentares. **Caderno Brasileiro de Ensino de Física**, Florianópolis, v. 21, p. 120-126, 2004.

MUÑOZ, E.; FRUTOS, B.; OLAYA, M.; SÁNCHEZ, J.; A finite element model development for simulation of the impact of slab thickness, joints, and membranes on indoor radon concentration. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 177, p. 280-289, 2017.

NADALETI, W.C.; NEGE, K.; BELI FILHO, P.; ANDREAZZZA, P.; QUADRO, M.; CORREA, E. K.; CORREA, L.; LEANDRO, D.; VIEIRA, B. Cinética e equilíbrio secular das principais séries radioativas e suas implicações ambientais. **Revista Brasileira de Engenharia e Sustentabilidade**, Pelotas, v. 2, p. 1-16, 2016.

NAVARANJAN, G.; BERRIAULT, C.; DO, M.; VILLENEUVE, P. J.; DEMERS, P. A. Cancer incidence and mortality from exposure to radon progeny among Ontario uranium miners. **Occupational Environmental Medicine**, v. 73, p. 838-845, 2016.

NEA-OECD. Exposure to radiation from natural radioactivity in building materials. **Report by group of experts of the OECD Nuclear Energy Agency (NEA)**, 1979, 39 p.

NRPB. **Health risks from radon**. National Radiological Protection Board, Reino Unido, 2000. 12 p.

OKUNO, E. Efeitos biológicos das radiações ionizantes: Acidente radiológico de Goiânia. **Estudos avançados**. v. 27, p. 185-199, 2013.

PAIVA, J. D. S.; SOUSA, E. E.; FARIAS, E. E. G.; CARMO, A. M.; SILVA FILHO, C. A.; DE FRANÇA, E. J. Applied tools for determining low-activity radionuclides in large environmental samples. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**, v. 306, p. 631-636, 2016.

PETTA, R. A.; CAMPOS, T. F. O gás radônio e suas implicações para a saúde pública. **Revista de Geologia**, v. 26, p. 7-18, 2013.

PRICHARD, H. M.; GESELL, T. F. Rapid measurements of ^{222}Rn in water with a commercial liquids scintillation counter. **Health Physics**, v. 33, p. 557-581, 1977.

RAVIKUMAR, P.; SOMASHEKAR, R. K. Distribution of ^{222}Rn in groundwater and estimation of resulting radiation dose to different age groups: A case study from Bangalore City. **Human and Ecological Risk Assessment: International Journal**, v. 24, p. 174-185, 2018.

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

REBELO, A. M. A.; BITTENCOURT, V. L.; MANTOVANI, L. E. Modelos de exalação de radônio em paisagens tropicais úmidas sobre granito. **Boletim Paranaense de Geociências**, v. 52, p. 61-76, 2003.

REZENDE, N. G. A. M. **O fosfato de Olinda e os conflitos de mineração**. Recife: CPRM, 1994. 19 p.

RODRIGUES, G. O. **Avaliação das doses de radiação em radiografias do tórax**. Dissertação de Mestrado. Porto Alegre: Instituto de Cardiologia do Rio Grande do Sul, 2011, 112 p.

ROZAS, S.; IDOETA, R.; ALEGRÍA, N.; HERRANZ, M. Radiological characterization and radon equilibrium factor in the outdoor air of a post-industrial urban area. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 151, p. 126-135, 2016.

SANTOS, F. P. C. **Radionuclídeos naturais em águas minerais comercializadas na cidade de Recife – PE**. Dissertação de Mestrado. Recife: PROTEN/UFPE, 2010a, 61 p.

SANTOS, T. O. **Distribuição da concentração de radônio em residências e outras construções da Região Metropolitana de Belo Horizonte**. Dissertação de Mestrado. Belo Horizonte: Departamento de Engenharia Nuclear/UFMG, 2010b, 146 p.

SCHUBAUER-BERIGAN, M. K.; DANIELS, R. D.; PINKERTON, L. E.; Radon exposure and mortality among White and American Indian uranium miners: an update of the Colorado Plateau cohort. **American Journal of Epidemiology**, v. 169, p. 718-730, 2009.

SINGH, P.; SINGH, P.; SAINI, K.; BAJWA, B. S.; Radionuclide measurements along with exhalation study in subsoil of southeast Haryana, India. **Environmental Earth Sciences**, v. 332, p. 253-261, 2017.

SOUZA, E. M. **Estratigrafia da sequência clástica inferior (andares coniaciano-maastrichtiano inferior) da Bacia da Paraíba e suas implicações paleogeográficas**. Tese de Doutorado. Recife: PPGEOC/UFPE, 2006, 375 p.

STATSOFT. **Statistica 7.0**. Tulsa: StatSoft, 2004.

TORRES-DURÁN, M.; BARROS-DIOS, J. M.; FERNÁNDEZ-VILLAR, A.; RUANO-RAVINA, A. Residential radon and lung cancer in never smokers: A systematic review. **Cancer letters**, v. 345, p. 21-26, 2014.

TUFAIL, M.; KHAN, M. A.; AHMAD, N.; KHAN, H. A.; ZAFAR, M. S. Measurements of radon concentration in some cities of Pakistan. **Nuclear Technology Publishing**, v. 40, p. 39-44, 1992.

TURNER, J. E.; **Atoms, radiation, and radiation protection**. Weinheim: WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, 2007. 586 p.

UNSCEAR. Sources and effects of ionizing radiation, **UNSCEAR report to the United Nations Assembly**, 2000.

UNSCEAR. Summary of low-dose radiation effects on health, **United Nations Publication**, New York, 2010. Disponível em: http://www.unscear.org/docs/reports/2010/UNSCEAR_2010_Report_M.pdf Acesso em: 06/02/2017.

USEPA. **Office of groundwater and drinking water rule: technical fact sheet EPA 815-F-99-006**. Washington, DC: United States Environmental Protection Agency, 1999.

USEPA. **A citizen's guide to radon: The guide to protecting yourself and your family from radon**. United States Environmental Protection Agency, 2016. 16 p. Disponível em: <http://www.epa.gov/radon/pubs/citguide.html> Acesso em: 28/01/2017.

VAUPOTIC, J.; GERGORIC, A.; KOBAL, I.; ZVAB, P.; KOZAK, K.; MAZUR, J.; KOCHOWSKA, E.; GRZADZIEL, D.; Radon concentration in soil gas and radon exhalation rate at the Ravne Fault in NW Slovenia. **Natural Hazards Earth System Sciences**, v. 10, p. 895-899, 2010.

VEIGA, L. H. S.; KOIFMAN, S.; MELO, V. P.; AMARAL, E. C. S. Preliminary indoor radon risk assessment at the Poços de Caldas Plateau, MG – Brazil. **Journal of Environmental Radioactivity**, v. 70, p. 161–176, 2003.

VOGIANNIS, E. G.; NIKOLOPOULOS, D. Radon sources and associated risk in terms of exposure and dose. **Frontiers in Public Health**, v. 2, p. 1-10, 2015.

WHO. **Guidelines for Drinking-water quality: Recommendations**. Genebra, Suíça,, 2004. 564 p.

WHO. Radon and cancer. **Fact Sheets**. 2009a. Disponível em: <<http://www.who.int/mediacentre/factsheets/fs291>> Acesso em: 28/01/2016.

WHO. **WHO handbook on indoor radon: a public health perspective**. Genebra, Suíça, 2009b. 94 p.

WHO. An overview of the evidence on environmental and occupational determinants of cancer. **WHO technical report series**, Asturias, Espanha, p. 1 - 7, 2011.

WILKENING, M. **Radon in the environment. Studies in Environmental Science**, Amsterdam: Elsevier Science Publishers B.V., 1990. 136 p.

WISSER, S. **Balancing natural radionuclides in drinking water supplies: an investigation in Germany and Canada with respect to geology, radiometry and legislation**. PhD. Thesis. Mainz: Geosciences Department/Johannes Gutenberg Universität, 2003. 156 p.

YADAV, A. K.; SAHOO, S. K.; MAHAPATRA, S.; KUMAR, A. V.; PANDEY, G.; LENKA, P. TRIPATHI, R. M. Concentrations of uranium in drinking water and cumulative, age-dependent radiation doses in four districts of Uttar Pradesh, India. **Toxicological & Environmental Chemistry**, v. 96, p. 192-200, 2014.