

UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR

PROGRAMA DE PÓS - GRADUAÇÃO EM TECNOLOGIAS
ENERGÉTICAS E NUCLEARES (PROTEN)

**MIGRAÇÃO DE URÂNIO E RÁDIO-226 NO SOLO EM TORNO
DA OCORRÊNCIA URANÍFERA DO MUNICÍPIO DE PEDRA - PE**

JOSÉ ARAÚJO DOS SANTOS JÚNIOR

RECIFE - PERNAMBUCO - BRASIL
AGOSTO - 2005

**MIGRAÇÃO DE URÂNIO E RÁDIO-226 NO SOLO EM TORNO
DA OCORRÊNCIA URANÍFERA DO MUNICÍPIO DE PEDRA - PE**

JOSÉ ARAÚJO DOS SANTOS JÚNIOR

**MIGRAÇÃO DE URÂNIO E RÁDIO-226 NO SOLO EM TORNO
DA OCORRÊNCIA URANÍFERA DO MUNICÍPIO DE PEDRA - PE**

Dissertação submetida ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, do Departamento de Energia Nuclear, da Universidade Federal de Pernambuco, para obtenção do título de Mestre em Ciências. Área de Concentração: Dosimetria e Instrumentação Nuclear.

ORIENTADOR: PROF. DR. ROMILTON DOS SANTOS AMARAL (DEN)

CO-ORIENTADOR: PROF. DR. JORGE JOÃO RICARDO FERREIRA CARDOSO (DGEO)

RECIFE - PERNAMBUCO - BRASIL

AGOSTO - 2005

Santos Júnior, José Araújo dos

Migração de urânio e rádio-226 no solo em torno da ocorrência uranífera do município de Pedra-PE / José Araújo dos Santos Júnior. – Recife : O Autor, 2005

x, 89 folhas : il., fig., tab.

Dissertação (mestrado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG. Energia Nuclear, 2005.

Inclui bibliografia, glossário e apêndice.

1. Dosimetria interna – Urânio e rádio. 2. Migração de urânio-238 e rádio-226 – Proteção radiológica ao indivíduo – Controle radiológico ambiental. 3. Radioatividade ambiental – Radionuclídeos naturais – Controle de radioisótopos. 4. Espectrometria gama – Determinação de radionuclídeos naturais. I. Título.

**621.039
621.4837**

**CDU (2.ed.)
CDD (22.ed.)**

**UFPE
BC2005-616**

**MIGRAÇÃO DE URÂNIO E RÁDIO-226 NO SOLO EM TORNO
DA OCORRÊNCIA URANÍFERA DO MUNICÍPIO DE PEDRA - PE**

José Araújo dos Santos Júnior

APROVADO EM: 23.08.2005

ORIENTADOR : Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral

CO-ORIENTADOR : Prof. Dr. Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso

COMISSÃO EXAMINADORA:



Prof. Dr. Francisco Fernando Lamego Simões Filho – CNEN/RJ



Profa. Dra. Eliane Valentim Honorato – CRCN/CNEN-PE



Profa. Dra. Edvane Borges da Silva – DEN/UFPE

Visto e permitida a impressão



Coordenador do PROTEN/DEN/UFPE

A minha esposa, **Josineide** e a
minha filha **Yasmin**,

Dedico.

AGRADECIMENTOS

Primeiramente agradeço a Deus, pela saúde, sabedoria e conhecimento, requisitos para mais uma conquista.

Aos meus pais, José Araújo dos Santos e Maria do Socorro Nóbrega Araújo, pela educação, compreensão, amizade e amor.

Aos meus irmãos: Marcus André, Vitória Patrícia, Virgínia Paula e Eduardo Eudes pelo incentivo.

A toda minha família, especialmente as minhas tias Maria das Neves e Vera Lúcia (in memoriam), meus avos Eloi, Ericina e Maria Sérgia (in memoriam), por acreditarem sempre no meu potencial, pelo incentivo e amor.

A minha esposa Josineide e minha filha Yasmin, pela compreensão, principalmente quando precisei está ausente. Obrigado pelo amor e carinho.

Aos meus orientadores Professores Dr. Romilton dos Santos Amaral e Dr. Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso pela paciência, tempo disponibilizado na pesquisa, conhecimento adquirido ao longo do curso e pela amizade.

Ao Grupo de Estudos em Radioproteção e Radioecologia (GERAR), e aos amigos do Departamento de Energia Nuclear: Cleomacio Miguel da Silva, Fabiana da Silva Aquino, José Marcos Ferreira da Silva, Laélia Campos, Lidiane Régia, Mariana Brayner Cavalcanti, Thiago de Salazar e Fernandes, pelo incentivo, sugestões e amizade.

A Sra. Iracilda, que muito contribuiu para o progresso desta pesquisa, disponibilizando sua residência para alojamento da nossa equipe de pesquisa.

Aos agrônomos do IRPA-PE, Srs. Djalma e Evandro, pelas contribuições nos acessos às áreas de estudo.

Aos funcionários do DEN, principalmente ao Sr. José Alves, pela colaboração nos desenhos e a Sra. Magali Rodrigues Ferreira (Secretaria do DEN), pelo excelente atendimento, condição que contribui para um ambiente harmonioso.

Aos parentes, colegas e amigos que de uma maneira ou de outra contribuíram para a conclusão deste trabalho, até mesmo, muitas vezes, com um simples gesto de carinho ou uma palavra amiga, meus sinceros agradecimentos.

Ao professor Suêlto Vita da Silveira, que por intermédio da Fundação de Apoio ao Desenvolvimento da Universidade Federal de Pernambuco (FADE), contribuiu financeiramente para este trabalho.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) pela bolsa concedida.

À Universidade Federal de Pernambuco (UFPE), especialmente ao Departamento de Energia Nuclear pelo apoio, e a todos os professores pelo conhecimento adquirido, especialmente ao Prof. Dr. Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira, coordenador do Programa de Pós-graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares pela contribuição científica.

Ao professor Carlos Adolpho M. Baltar do Departamento de Engenharia de Minas - UFPE (Laboratório de Tecnologia Mineral), ao Departamento de Física - UFPE, e à Fundação de Hematologia e Hemoterapia de Pernambuco (HEMOPE) pela infraestrutura disponibilizada.

Aos professores e/ou pesquisadores: Dr. Ademir de Jesus Amaral (DEN-UFPE), Dr. Carlos Costa Dantas (DEN-UFPE), Dr. Edmilson Santos de Lima (CTG-UFPE), Dr. Eldemar de Albuquerque Menor (DGEO-UFPE), Dra. Eliane Valentim Honorato (CRCN-PE), Dra. Edvane Borges da Silva (DEN-UFPE), Dr. Francisco Fernando Lamego Simões Filho (IRD-Rio de Janeiro/RJ) e a Dra. Kátia Cristina da Silva de Freitas (DQ-UFRPE), pelas participações nas bancas examinadoras (seminários e defesa), avaliações e sugestões.

Ao Professor Bernardo M. Dantas do Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD), Rio de Janeiro, pela contribuição científica.

SUMÁRIO

	Página
LISTA DE FIGURAS	iii
LISTA DE TABELAS	v
LISTA DE ABREVIATURAS E SÍMBOLOS	vi
RESUMO	ix
SUMMARY	x
1 INTRODUÇÃO	1
2 REVISÃO DE LITERATURA	3
2.1 Pedologia	3
2.1.1 Intemperismo e formação do solo	3
2.1.2 Classificação das camadas do solo	4
2.2 Radioatividade ambiental	5
2.3 Mobilidade dos elementos radioativos naturais	8
2.4 Urânio	9
2.4.1 Geoquímica do Urânio	11
2.4.1.1 Minerais de urânio	11
2.4.1.2 Ciclo geoquímico do urânio	15
2.5 Rádio	16
2.5.1 Rádio na natureza	16
2.6 Métodos de determinação da composição mineralógica de rochas	18
2.6.1 Difractometria de Raios-X	18
2.6.2 Análise modal	19
2.7 Espectrometria gama	20
3 MATERIAIS E MÉTODOS	25
3.1 Geologia e Radiometria da área Venturosa	25
3.2 Localização da área e vias de acesso	26
3.3 Aspectos climáticos e econômicos	29
3.4 A área anômala	29

3.5 Escolha da área de estudo	30
3.6 Procedimentos de amostragem e tratamento das amostras.....	33
3.6.1 Amostras de rocha	33
3.6.2 Amostras de solo	34
3.7 Procedimentos analíticos	35
3.7.1 Difractometria de Raios X (DRX)	35
3.7.2 Análise modal	36
3.7.3 Eficiência de contagem.....	37
3.7.4 Sistema de detecção gama	38
3.8 Técnica de análise.....	40
3.9 Limite de detecção (LD).....	42
4 RESULTADOS E DISCUSSÃO	44
4.1 Monitoração de área	44
4.2 Identificação mineralógica	45
4.2.1 Análise por Difractometria de Raios X (DRX).....	45
4.2.2 Análise modal	47
4.3 Análise por espectrometria gama	48
4.3.1 Cálculo da eficiência de contagem	48
4.3.2 Cálculo das atividades	50
4.3.3 Distribuição de ^{238}U e ^{226}Ra no perfil amplo do solo da área anômala	56
4.3.4 Análise espectrométrica da rocha	58
4.3.5 Análise espectrométrica do solo	59
4.3.6 Distribuição de frequência para ^{238}U e ^{226}Ra	63
4.3.7 Relação $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	66
4.3.8 Curvas de isoatividades para o urânio e rádio no solo	68
4.3.9 Comparação da área de estudo com algumas áreas anômalas no mundo.....	71
5 CONCLUSÕES	73
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS	75
GLOSSÁRIO.....	84
APÊNDICE	88

LISTA DE FIGURAS

	Página
Figura 1: Composição volumétrica do solo.....	4
Figura 2: Perfil geral do solo.....	5
Figura 3: Exposição do homem à radiação ionizante.....	7
Figura 4: Série de decaimento radioativo dos actínídeos.....	10
Figura 5: Série de decaimento radioativo do ^{238}U	10
Figura 6: Teores de urânio em diferentes rochas.....	12
Figura 7: Ciclo geoquímico do urânio.....	15
Figura 8: Mapa de Pernambuco.....	27
Figura 9: Mapa de localização da área e vias de acesso.....	28
Figura 10: Ocorrência radioativa da fazenda F01.....	31
Figura 11: Mapa de amostragem (F01).....	32
Figura 12: Foto do sistema de medidas.....	39
Figura 13: a - Esquema do modelo do detector; b - Detector HPGe na blindagem.....	39
Figura 14: Diagrama de blocos do sistema de medidas.....	40
Figura 15: Difratoograma DRX para Fe_2O_3	46
Figura 16: Difratoograma DRX para $\text{U}_{1-3}\text{O}_{2-8}$	46
Figura 17: Fotos microscópicas da rocha cálcio-silicática anfíbolítica F01.....	47
Figura 18: Curva de eficiência para ^{152}Eu	49
Figura 19: Atividades do ^{226}Ra em solo (352 keV e 609 keV).....	53
Figura 20: Atividades do ^{238}U em solo (63 keV e 93 keV).....	54
Figura 21: Distribuição do ^{238}U e ^{226}Ra ao longo do perfil amplo do solo.....	56
Figura 22: Correlação entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra no perfil amplo do solo.....	57
Figura 23: Atividades específicas de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de rocha.....	58
Figura 24: Correlação entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras da rocha.....	59
Figura 25: Atividades específicas de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de solo.....	60
Figura 26: Correlação linear das atividades do ^{238}U e ^{226}Ra na área de estudada.....	61
Figura 27: Correlação linear das atividades do ^{238}U e ^{226}Ra próximas da anomalia.....	62

Figura 28: Correlação linear das atividades do ^{238}U e ^{226}Ra distanciadas da anomalia	62
Figura 29: Distribuição de frequência das atividades do ^{238}U	64
Figura 30: Distribuição de frequência das atividades do ^{226}Ra	64
Figura 31: Razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ em rocha	67
Figura 32: Razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ em solo.....	67
Figura 33: Curvas de isoatividades do ^{238}U no solo.....	69
Figura 34: Curvas de isoatividades do ^{226}Ra no solo.	69
Figura 35: Curvas de isoatividades da razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ no solo.....	69
Figura 36: Distribuição em 3D de ^{238}U na área anômala (rocha + solo).....	70
Figura 37: Distribuição em 3D de ^{226}Ra na área anômala (rocha + solo).....	70

LISTA DE TABELAS

	Página
Tabela 1: Clarkes do urânio nos principais tipos de rochas	13
Tabela 2: Atividades específicas do urânio em rochas graníticas do Egito.....	13
Tabela 3: Valores de taxas de exposições gama para diferentes rochas.....	17
Tabela 4: Determinação de radionuclídeos através de nuclídeos emissores gama.....	24
Tabela 5: Valores relativos de “Background” na Folha Venturosa.....	26
Tabela 6: Limites de detecção das atividades do ^{238}U e ^{226}Ra	43
Tabela 7: Medidas radiométricas com cintilômetro nas áreas anômalas.....	44
Tabela 8: Atividades específicas do ^{228}U e ^{226}Ra no solo, e a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	50
Tabela 9: Atividades específicas do ^{228}U e ^{226}Ra em rocha, e a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$	52
Tabela 10: Parâmetros estatísticos das atividades do ^{226}Ra	53
Tabela 11: Parâmetros estatísticos das atividades do ^{238}U	55
Tabela 12: Parâmetros estatísticos do ^{238}U e ^{226}Ra no solo.....	65
Tabela 13: Concentrações específicas do ^{238}U em solo de algumas áreas do planeta.....	71
Tabela 14: Concentrações específicas do ^{226}Ra em solo de algumas áreas do planeta	72

LISTA DE ABREVIATURAS E SÍMBOLOS

A_0	Atividade específica inicial
A	Atividade específica final
An	Anortita
Amp.	Amplificador
BG	Background
Bi	Bismuto, elemento químico
^{214}Bi	Bismuto-214, elemento químico radioativo
Bq.kg^{-1}	Becquerel por quilograma
Bq.ml^{-1}	Becquerel por mililitro
C	Taxa de contagem (área do pico)
Ca	Cálcio, elemento químico
CH_4	Molécula de metano, composto orgânico
CNEN	Comissão Nacional de Energia Nuclear
^{60}Co	Cobalto 60, elemento químico radioativo
cps	Contagem por segundo
DRM	Departamento Regional de Mineralogia
DRX	Difratometria de raios X
eV	Eletron-volt
^{152}Eu	Európio-152, elemento químico radioativo
fc	Fator de concentração
Fe	Ferro, elemento químico
Fe_2O_3	Maghemita, mineral
F01, F02	Fazendas 01 e 02, respectivamente
Ge	Germânio, elemento químico
Ge(Li)	Germânio dopado com lítio
ha	Hectare
H_2	Molécula do gás hidrogênio
HEMOPE	Hematologia e Hemoterapia de Pernambuco
H_2S	Gás sulfídrico

HPGe	Germânio hiperpuro
HV	Alta voltagem
IC	Índice de Chayes
I_γ	Abundância gama
^{40}K	Potássio 40, elemento químico radioativo
keV	Quilo eletrôn-volt
kV	Quilovolt
LD	Limite de detecção
Li	Lítio, elemento químico
M	Massa
MCA	Multi - canal
Mg	Magnésio, elemento químico
Na	Sódio, elemento químico
NaI(Tl)	Iodeto de sódio ativado com tálio
NUCLEBRAS	Empresas Nucleares Brasileiras
$^{234\text{m}}\text{Pa}$	Protactínio 234 meta estável
$^{206}\text{Pb}, ^{207}\text{Pb}$	Isótopos estáveis do chumbo
$^{210}\text{Pb}, ^{214}\text{Pb}$	Isótopos radioativos do elemento químico chumbo
$^{210}\text{Po}, ^{214}\text{Po}, ^{218}\text{Po}$	Isótopos radioativos do polônio
ppm	Partes por milhão
ppt	Partes por trilhão
Pré-amp.	Pré - amplificador
$^{223}\text{Ra}, ^{224}\text{Ra}, ^{226}\text{Ra}, ^{228}\text{Ra}$	Isótopos radioativos do rádio
^{87}Rb	Rubídio 87, elemento químico radioativo
^{222}Rn	Radônio 222, elemento químico radioativo gasoso
S	Enxofre, elemento químico
SUDENE	Superintendência do Desenvolvimento do Nordeste
t	Tempo de contagem
$t_{1/2}$	Meia-vida ou tempo de meia-vida
$^{230}\text{Th}, ^{232}\text{Th}, ^{234}\text{Th}$	Isótopos radioativos do tório
^{208}Tl	Tálio 208, elemento químico

TR	Terras raras
U^{4+} , U^{5+} , U^{6+}	Níveis de oxidação do urânio
^{234}U , ^{235}U , ^{238}U	Isótopos radioativos naturais do urânio
UO_2	Uraninita
UO_2^{2+}	Íon uranilo, uranila ou divalente do urânio
UO_3	Uranita ou trióxido de urânio
$U_{1-3}O_{2-8}$	Uraninita parcialmente oxidada
U_3O_8	Pechblenda, mineral de urânio
AX	Nuclídeo de massa atômica A
Z	Número atômico
$\mu R.h^{-1}$	Microröntgen por hora
α	Partícula alfa
β	Partícula beta
γ	Radiação eletromagnética gama
ε	Eficiência de contagem

MIGRAÇÃO DE URÂNIO E RÁDIO-226 NO SOLO EM TORNO DA OCORRÊNCIA URANÍFERA DO MUNICÍPIO DE PEDRA - PE

Autor: José Araújo dos Santos Júnior

Orientador: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral

Co-orientador: Prof. Dr. Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso

RESUMO

Estudos radiométricos realizados pelas Empresas Nucleares Brasileiras (NUCLEBRAS), no período de 1974 a 1975, permitiram a localização de áreas radiometricamente anômalas em urânio no município de Pedra, Agreste de Pernambuco. Como não havia estimativa da influência desta anomalia no solo adjacente, foi realizado um estudo que tem como principal objetivo avaliar a migração de ^{238}U e ^{226}Ra no solo em torno desta ocorrência. A monitoração de área com um cintilômetro, permitiu a localização das duas principais áreas anômalas. Com a finalidade de avaliar a migração destes radionuclídeos no solo adjacente, foram realizadas análises mineralógicas e radiométricas em uma área de aproximadamente 40.000 m², onde está localizada uma das principais anomalias. A difratometria de raios X na amostra de rocha, forneceu como resultado a uraninita parcialmente oxidada, e a análise modal permitiu determinar 0,39% deste mineral, através da qual foi possível calcular o teor médio de urânio na uraninita (10.000 ppm) na rocha anômala da fazenda F01. A análise microscópica permitiu classificar a rocha, como sendo uma cálcio-silicática anfíbolítica, um tipo de rocha que normalmente não apresenta urânio associado. A espectrometria gama com detector de elevada resolução (HPGe), permitiu avaliar as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra nesta área. Um total de 92 amostras, incluindo rocha e solo, possibilitou avaliar a migração destes radionuclídeos na área estudada. As concentrações de ^{238}U variaram de 16.567 a 95.980 Bq.kg⁻¹ para rocha e de 22 a 268 Bq.kg⁻¹ para solo. Enquanto que, para o ^{226}Ra , obteve-se valores que variaram de 14.018 a 83.567 Bq.kg⁻¹ para rocha e de 14 a 367 Bq.kg⁻¹ para solo. A partir destes valores, foi possível uma avaliação detalhada da migração destes radionuclídeos na área correspondente.

MIGRATION OF URANIUM AND RADIUM-226 IN THE SOIL AROUND THE URANIFEROUS OCCURRENCE OF THE MUNICIPALITY OF PEDRA – PE

Author: José Araújo dos Santos Júnior

Adviser: Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral

Co-adviser: Prof. Dr. Jorge João Ricardo Ferreira Cardoso

SUMMARY

Radiometric studies carried out by the Brazilian Nuclear Enterprises (NUCLEBRAS), in the period from 1974 to 1975, permitted the localization of areas which are radiometrically anomalous in uranium in the municipality of Pedra, in the rural area of Pernambuco. As there has not been an estimate of this anomaly in the adjacent soil, a study, with the principal objective of evaluating the migration of ^{238}U and ^{226}Ra in the soil around this event, was carried out. The monitoring of the area with a scintilometer, gave the localization of two principal anomalous areas. With the aim of evaluating the migration of these radionuclides in the adjacent soil, mineral and radiometric analyses were carried out in an area of approximately 40,000 m², where the principal anomalies are located. An X rays diffractometry in the rock sample, gave the result of partially oxidized uraninite, and a modal analysis permitted the determination of 0.39% of this mineral, through which it was possible to calculate the average uranium content in the uraninite (10,000 ppm) in the anomalous rock of the F01 farm. A microscopic analysis, classified the rock as being a amphibol calcium-silicatic, a kind of that normally is not associated with uranium. Gamma spectrometry with a high resolution detector (HPGe), permitted the evaluation of ^{238}U and ^{226}Ra activities in this area. A total of 92 samples, including rock and soil, made it possible to evaluate the migration of these radionuclides in the area studied. The concentrations of ^{238}U varied from 16,567 to 95,980 Bq.kg⁻¹ for rock and 22 to 268 Bq.kg⁻¹ for soil. While for the ^{226}Ra . Values were obtained that varied from 14,018 to 83,567 Bq.kg⁻¹ for rock and 14 to 367 Bq.kg⁻¹ for soil. From these values, it was possible to make a detailed evaluation of the radionuclides migration in the corresponding area.

1 INTRODUÇÃO

Nos últimos anos tem-se evidenciado um crescente interesse no estudo dos níveis de radioatividade natural, principalmente dos radionuclídeos ^{238}U e ^{226}Ra presentes no ambiente. O controle da radioatividade ambiental é de extrema importância para obtenção de informações sobre a exposição de pessoas e animais a fontes potenciais em ocorrências radioativas naturais. Por isso, é fundamental o conhecimento de informações sobre os elementos radioativos presentes em rochas e solos e dos seus teores na crosta continental, para estimar o risco radiológico proveniente desses isótopos naturais. Sendo assim, é necessário o estudo dos níveis de emissão radioativa, principalmente por parte das formações geológicas rochosas.

A região Nordeste, apesar da interessante estrutura geológica, não foi suficientemente explorada em termos de estudos radiológicos ambientais. Entretanto, no período de 1974 a 1977 as Empresas Nucleares Brasileiras S.A. (NUCLEBRAS) descobriram ocorrências de urânio no município de Pedra, Agreste de Pernambuco. A área onde está localizada as principais anomalias de urânio é de fácil acesso, povoada e apresenta grande variedade de propriedades rurais, com atividades agrárias e pecuárias específicas.

Não havia estimativa de como o urânio e o rádio estavam distribuídos no meio ambiente devido à ação dos agentes de intemperismo, desde o seu ponto de origem até onde possam ter influência no meio. Além disso, a ação antrópica, principalmente de cultivo, altera a distribuição natural desses radionuclídeos. Contudo, a área estudada não se presta a lavouras, sendo usada apenas para pastagem, e por isso a ação antrópica é insignificante.

Com base nesses critérios, este trabalho objetiva, principalmente, o estudo da migração de ^{238}U e do ^{226}Ra em uma área de aproximadamente 40.000 m^2 (4 ha) em torno de uma das principais anomalias radiométricas, avaliando a distribuição destes radionuclídeos, desde a rocha matriz, bem como as possíveis conseqüências para o meio ambiente. Isto porque, a área onde se localiza a ocorrência, por ser usada como área de pasto, serve de apoio à criação de gado leiteiro e comercialização de leite, assim como dos seus derivados (produção de queijos, doces e iogurtes). Sendo assim, os radionuclídeos podem estar contidos no solo em quantidades elevadas, e serem uma fonte potencial de transferências de urânio e rádio para as plantas, e conseqüentemente para a cadeia alimentar dos animais e posteriormente do homem.

Com base na técnica radioanalítica da espectrometria de raios gama, empregando-se um detector de germânio com alta pureza (HPGe), foi possível a detecção gama desses emissores com boa precisão. Assim, as análises dos espectros obtidos para as amostras de rocha e solo, possibilitou a determinação das atividades do ^{238}U e do ^{226}Ra na área de estudo.

2 REVISÃO DE LITERATURA

2.1 Pedologia

2.1.1 Intemperismo e formação do solo

O intemperismo é o conjunto de modificações de ordem física (desagregação) e química (decomposição) que as rochas sofrem com o tempo. Os principais fatores que controlam a ação do intemperismo são: o clima, que se expressa na variação sazonal da temperatura e na distribuição das chuvas; o relevo, que influi no regime de infiltração e drenagem das águas pluviais; a fauna e a flora, na formação da matéria orgânica; o tipo da rocha-mãe, que segundo sua natureza, apresenta resistência diferenciada aos processos de alterações intempéricas, e finalmente o tempo de exposição da rocha aos agentes de intemperismo (TOLEDO et. al., 2000).

Os principais tipos de intemperismo são: o físico, que provoca a desagregação das rochas, e o químico, cujo principal agente é a água da chuva, que se infiltra e percola a rocha. A água, quando em contato com o CO₂ da atmosfera adquire caráter ácido e torna-se um forte agente de intemperismo.

Dessa forma, a formação do solo inicia-se com os fenômenos de desagregação e alteração da rocha matriz pela ação conjunta desses agentes externos, resultando daí a sua fração mineral, que, juntamente com água e ar, formam o ambiente propício para o desenvolvimento de animais e plantas, que posteriormente dão origem à matéria orgânica. A fração sólida (minerais e matéria orgânica) constitui aproximadamente 50% do seu volume (Figura 1).

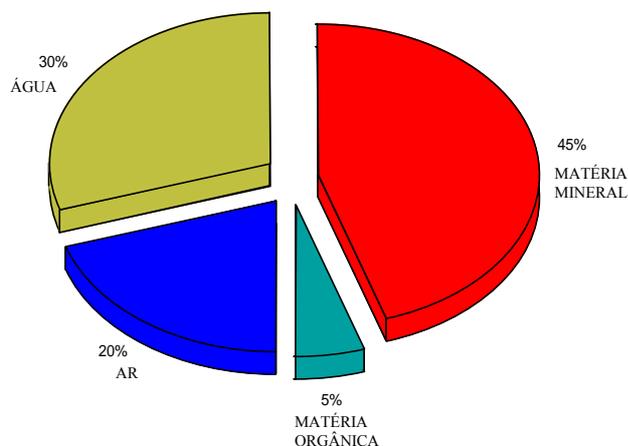


Figura 1: Composição volumétrica do solo (VIEIRA, 1988).

2.1.2 Classificação das camadas do solo

O solo é dividido em camadas horizontais denominadas horizontes. Sua diferenciação é baseada em critérios como textura, cor, consistência, estrutura, atividade biológica, tipo de superfície dos agregados e outros.

Geoquimicamente, o solo possui três horizontes bem definidos, os quais apresentam composição química, textura e estrutura próprias (Figura 2). O horizonte A, que além de componentes minerais contém teor elevado de matéria orgânica; o horizonte B, com alguma matéria orgânica e elevada fração mineral, principalmente argilominerais; e o horizonte C, caracterizado pela rocha-mãe (R) decomposta (GINSBURG, 1963; ROSE et al., 1979).

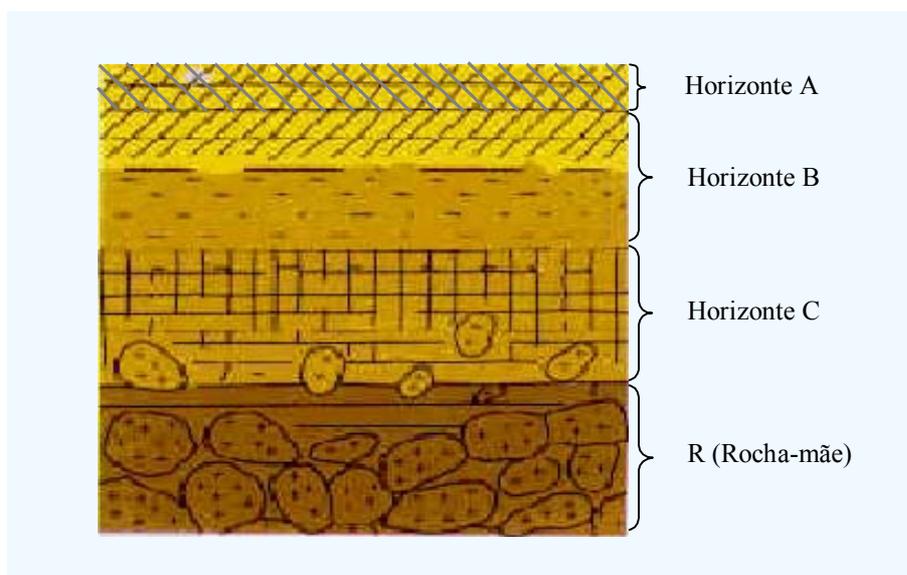


Figura 2: Perfil geral do solo (FORTUNECITY, 2004).

A formação de horizontes está relacionada com a evolução do solo, que é caracterizada por migrações de substâncias que dependem dos movimentos das águas, nos sentidos ascendente e descendente, sendo estes movimentos responsáveis pela mobilização dos elementos solúveis e coloidais. Os deslocamentos das águas, quando descendentes provocam a lixiviação e são freqüentes nas zonas de clima com forte pluviosidade, enquanto que os movimentos ascendentes são característicos das regiões que apresentam clima quente e seco (FORTUNECITY, 2004).

2.2 Radioatividade ambiental

A radiação ambiental é parte natural do ambiente, pois está presente na atmosfera e na superfície da Terra (SAVANNAH, 1996; SHENBER, 1997; KANNAN et al., 2002). Na primeira, é produzida por radionuclídeos cosmogênicos e na segunda por radionuclídeos primordiais (TZORTZIS et al., 2003). Sendo assim, as fontes naturais de radiação ambiental incluem: a radiação cósmica, que provem do espaço cósmico, e as radiações terrestres, provenientes das rochas e solos. Portanto, a geologia do ambiente é de grande importância com relação à exposição à radiação proveniente de elementos

radioativos das rochas e solos, tais como, urânio, tório e potássio-40 (SAVANNAH, 1996; SHENBER, 1997). Os níveis normais de radiação terrestre, “background” (BG), dependem da origem das rochas e solos existentes na área, ou seja, das condições geológicas e geoquímicas (TZORTZIS et al., 2003).

Muitas rochas contêm elementos radioativos naturais, como ^{40}K , ^{232}Th , ^{238}U e ^{226}Ra , que contribuem para o aumento dos níveis de radioatividade ambiental (ARAFA, 2004). Altos níveis de radiação estão associados a rochas ígneas, como granitos e seus pegmatitos. As rochas sedimentares apresentam em geral baixos níveis de radiação. Contudo, alguns xistos e rochas fosfáticas podem conter concentrações de radionuclídeos relativamente altas (UNSCEAR, 1993 apud TZORTZIS et al., 2003).

Em decorrência da formação natural e antropogênica, aproximadamente 340 nuclídeos podem ser formados no ambiente. Destes, mais de 70 elementos são radioativos e apresentam geralmente, elevados números atômicos (Z). Os radionuclídeos naturais são formados naturalmente no ar, água, solos e rochas, conseqüentemente podem também ser encontrados nos materiais de construção e nas residências. Por isso, o conhecimento da distribuição destes radionuclídeos no ambiente é um pré-requisito importante para a avaliação e controle da exposição à radiação por parte do público e conseqüentemente da dose de radiação recebida (MIAH et al., 1998; KANNAN et al., 2002).

A maioria dos radionuclídeos naturais apresenta elevado número atômico e pertence a três grandes séries radioativas naturais: série do ^{238}U , do ^{232}Th e do actínio (^{235}U). Estas produzem em seus decaimentos grupos de radionuclídeos com diferentes propriedades químicas e físicas e com amplas faixas de meias-vidas. Estes radionuclídeos contribuem significativamente com uma dose de radiação para a população quando inalados ou ingeridos, enquanto que as radiações gama causam exposições externas com conseqüentes doses absorvidas (EISENBUD; GESELL, 1997; SANTOS; MARQUES, 2003; SUJO et al., 2004). Desta forma, os radionuclídeos naturais contribuem com a maior parte da dose de radiação proveniente do meio ambiente (GONZÁLEZ-CHORNET; GONZÁLEZ-LABAJO, 2004), conforme a Figura 3.

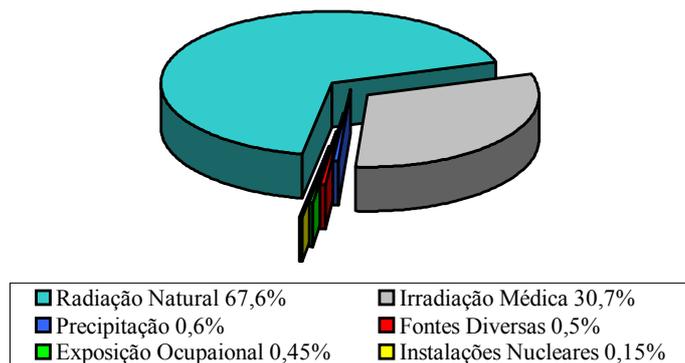


Figura 3: Exposição do homem à radiação ionizante.

Quando os agentes naturais de intemperismo, ar, água, CO₂, etc., atingem partes de uma rocha matriz, reações físico-químicas como oxidação, decomposição, e lixiviação, provocam alterações na rocha. Os produtos do intemperismo (rocha alterada e solo) estão sujeitos a outros processos da seqüência exógena, como transporte e sedimentação (TOLEDO et. al., 2000).

No caso dos elementos radioativos, numa escala de micro-fraturamento, ocorre também a ação do deslocamento de recuo alfa, que é um agente de intemperismo físico. O decaimento alfa dos radionuclídeos resulta num recuo do produto do decaimento de 10 - 20 nm no meio cristalino, aumentando a vulnerabilidade do material ao ataque químico e conseqüentemente a possibilidade de lixiviação e transformação do material da fase sólida para a solução (LAURIA et al., 2003). Sendo assim, os radionuclídeos podem se distribuir na superfície dos solos, sendo uma das maiores características químicas destes, a capacidade de adsorver e reter íons.

Quando cátions solúveis estão presentes no solo, podem ocorrer diferentes permutações. Um cátion pode remanescer na solução do solo e ser altamente móvel, ou ser adsorvido em uma superfície de partícula de argila ou em colóides orgânicos do solo, e ser imobilizado.

2.3 Mobilidade dos elementos radioativos naturais

Os elementos radioativos de maior interesse para o estudo dos solos são os que apresentam algum grau expressivo de mobilidade. Estes podem mover-se no solo pela influência da água e de soluções salinas, tornando-se disponíveis para as plantas (SCHULZ, 1965). A mobilidade irá depender de alguns fatores como: meia-vida, visto que, quanto maior a meia-vida do nuclídeo maior a distância que o isótopo pode migrar no ambiente; de características químicas e físicas dos radionuclídeos e do meio de dispersão, pois quando apresentam características diferentes, resultam em diferentes comportamentos destes elementos no ambiente, o que promove a segregação dos radionuclídeos e a quebra do equilíbrio radioativo. Além destes fatores, a mobilidade depende do pH do solo, da hidrologia de cada terreno; da presença de minerais de argila e das características da vegetação e organismos presentes no meio (LAURIA et al., 2003), onde a vegetação retém radionuclídeos a longo prazo, disponibilizando-os para migração no ambiente, principalmente através do fluxo de corrente de água, podendo haver bioacumulação nos vegetais (HRABOVSKYY et al., 2004).

Dos elementos radioativos naturais, os que apresentam bom grau de mobilidade no solo, são: urânio (U^{6+}) e radônio. Alguns elementos podem estar presentes como cátions, de modo a serem adsorvidos pelos minerais do solo. O grau de adsorção e deposição de íons (cátions) pelo solo, depende de alguns fatores, tais como: quantidade de espécies de outros íons presentes, tipo de minerais de argila e o pH do solo (SCHULZ, 1965).

Estrôncio, bário e rádio são membros do grupo dos metais alcalinos terrosos, na tabela periódica (família ou grupo 2A), sendo os elementos oxidados deste grupo sempre presentes no estado de oxidação +2. Alguns membros do grupo 2A apresentam acentuada substituição isomórfica, como por exemplo, o rádio e o bário. O urânio, embora pertença ao grupo 5B (VB) da tabela periódica, apresenta boa substituição isomórfica com o cálcio. O urânio encontra-se móvel no solo, quando na forma do íon divalente uranilo, UO_2^{2+} .

2.4 Urânio

O urânio ocorre na natureza na forma de um ou mais dos seus óxidos. Desses óxidos, dois são considerados mais importantes, UO_2 e UO_3 , sendo U_3O_8 , um óxido intermediário de muita importância (ARGENTIÈRE, 1954).

A descoberta do óxido de urânio foi realizada em agosto de 1789 pelo químico alemão, Martin Heinrich Klaproth ao realizar uma experiência de rotina, dissolvendo um pedaço de pechblenda em água régia. O elemento urânio foi isolado em 1842 por Peligot (KIMBLE; SINCLAIR, 1950).

Segundo Hess et al. (1985 apud Litaor, 1995) e Karangelos et al. (2004), a abundância natural dos três primeiros isótopos do urânio é: ^{234}U , aproximadamente 0,0056% comparada com 0,72% do ^{235}U , e com 99,273% do ^{238}U . O resultado é uma atividade específica muito baixa, exceto para o urânio enriquecido. Estes três isótopos do urânio natural emitem radiação alfa, e os isótopos ^{235}U e ^{238}U são precursores de duas independentes e importantes séries de decaimento radioativo, as quais terminam em dois isótopos estáveis do chumbo (Figuras 4 e 5). O ^{234}U é um intermediário na série de decaimento do ^{238}U , formado através da emissão de uma partícula alfa seguida por duas emissões de partículas beta (WEDEPOHL, 1978; FISHER, et al., 1983).

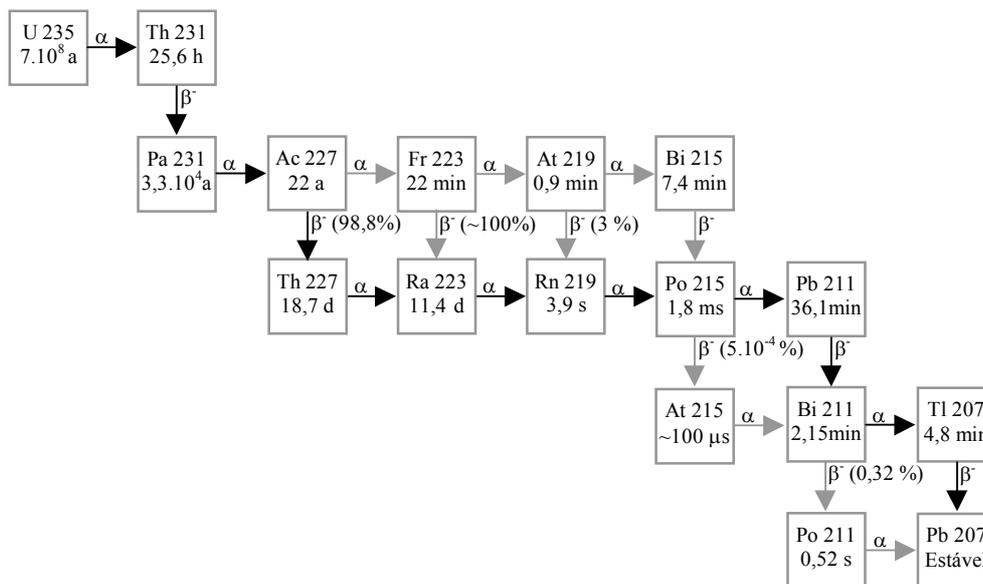


Figura 4: Série de decaimento radioativo dos actínídeos (EGGEBERT-SEELMANN et al., 1974).

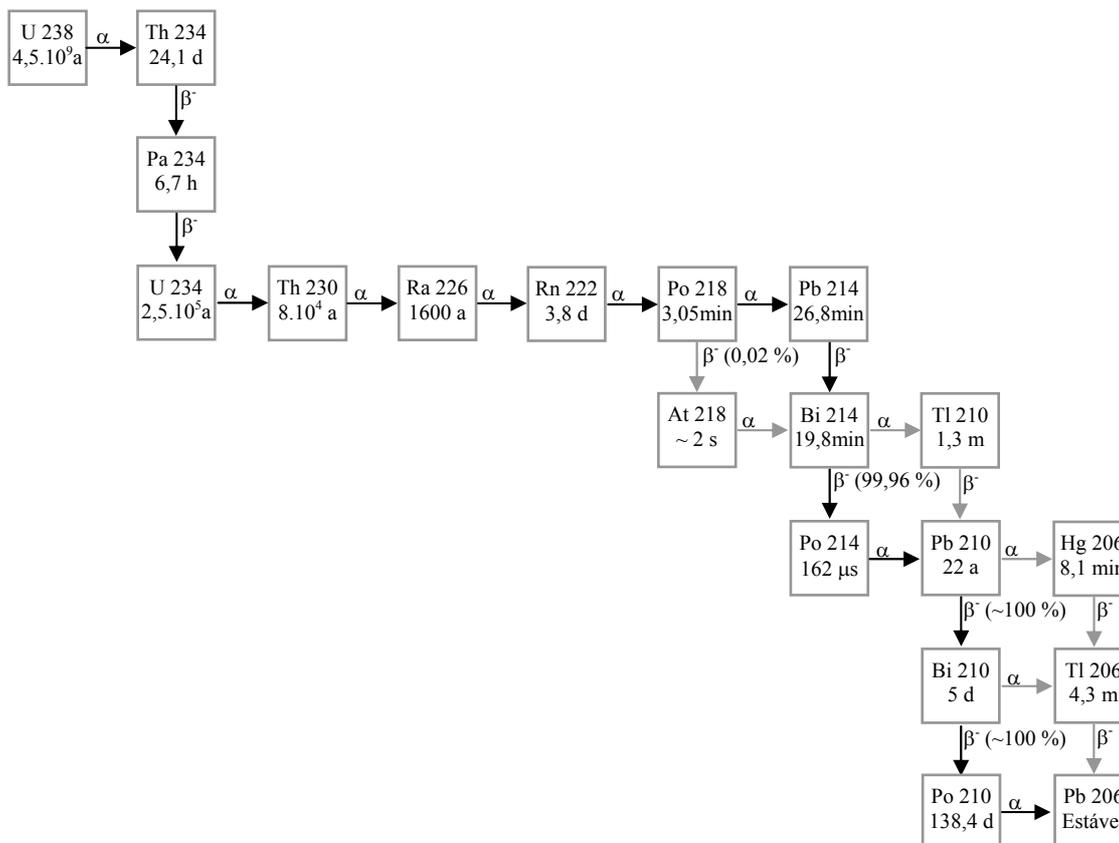


Figura 5: Série de decaimento radioativo do ^{238}U (EGGEBERT-SEELMANN et al., 1974).

2.4.1 Geoquímica do Urânio

2.4.1.1 Minerais de urânio

Conforme apresentado por Kimble e Sinclair (1950), os minerais de urânio são divididos em duas categorias, a saber: minerais primários e secundários. Os minerais primários são aqueles que não sofreram mudanças desde sua formação, enquanto que os minerais secundários são formados a partir dos primários pelo intemperismo. Entre primários e secundários, existem mais de cem minerais de urânio (WEDEPOHL, 1978; SANSONE et al., 2001).

Segundo a bibliografia atual, os principais minerais de urânio economicamente mais interessantes, são: uraninita (UO_2), mineral de cor geralmente preta, cuja composição real é $(\text{U, Th, terras raras})\text{O}_2$ com no máximo 88% de urânio; pechblenda (U_3O_8) - $(\text{U, Th, terras raras})_3\text{O}_8$, de cor verde profundo e às vezes negra como piche com aproximadamente 60 a 70% de U, formada por óxidos de U^{4+} e U^{6+} ($2\text{UO}_3 \cdot \text{UO}_2$); coffinita ($\text{U, Th, Ca, terras raras})\text{SiO}_4$ com aproximadamente 74% de U; brannerita ($\text{U, Th, Ca, terras raras}) (\text{Ti, Fe}^{2+})_2\text{O}_6$, aproximadamente 35,8% de U; carnotita $(\text{K}_2, \text{Ca})[\text{UO}_2 \cdot \text{VO}_4]_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ com 44 a 52,8% de U; autunita $\text{Ca}[\text{UO}_2 \cdot \text{PO}_4]_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$, aproximadamente 54,5% de U; torbernita $\text{Cu}[\text{UO}_2 \cdot \text{PO}_4]_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$, com 52,8% de U; thucholita - humatos de urânio, em média 1,8% de U (PETRASCHECK; POHL, 1982). Além destes, existem muitos outros com teores elevados de urânio, e que podem ter interesse econômico, como por exemplo, a uranocircita - $\text{Ba}(\text{UO}_2 \cdot \text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$; a uranofana (uranotilo)- $\text{Ca}(\text{UO}_2)_2 [(\text{OH}) \cdot \text{SiO}_3]_2 \cdot 5 \text{H}_2\text{O}$; além de outros. Em todos os minerais de urânio, este pode ser parcialmente substituído por tório e por “terras raras”. O estado de oxidação do urânio em minerais primários é +4, e em minerais secundários, principalmente +6.

Todavia, existe na literatura uma grande divergência sobre os termos uraninita e pechblenda e as fórmulas químicas correspondentes. A fim de minimizar tal divergência, denomina-se aqui uraninita o UO_2 , e pechblenda os compostos oxidados do UO_2 , tendo como fórmula mais comum U_3O_8 .

Devido principalmente ao seu baixo “clarke”¹ global (2,7 ppm) (KRAUSKOPF, 1979), aproximadamente 36 Bq.kg^{-1} (EISENBUD; GESELL, 1997), o urânio tende a concentrar-se na fase final da diferenciação magmática, principalmente em pegmatitos graníticos, onde ocorre em um grande número de minerais. A Figura 6 mostra as faixas comuns de teores de urânio nos diferentes tipos geoquímicos de rochas magmáticas (ígneas), e a Tabela 1 os “clarkes” específicos em rochas magmáticas e sedimentares.

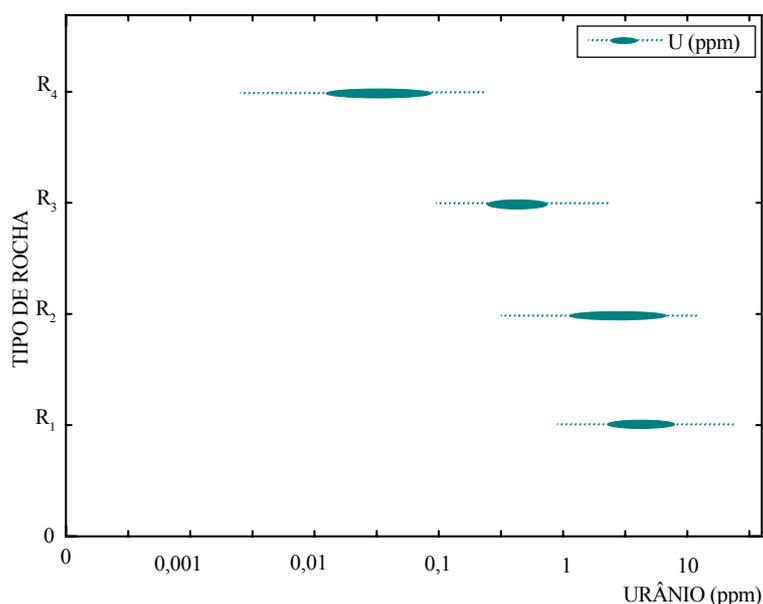


Figura 6: Teores de urânio em diferentes rochas magmáticas (WEDEPOHL, 1978). R₁: rochas ácidas (riolitos, granitos, etc.); R₂: rochas intermediárias (andesitos, dioritos, granodioritos, etc.); R₃: rochas básicas (basaltos, gabros, etc.); R₄: rochas ultrabásicas (peridotitos, etc.).

¹ Clarke é o teor médio de um elemento químico na crosta continental (MASON, 1971).

Tabela 1: “Clarkes” do urânio nos principais tipos de rochas magmáticas [(a) segundo Vinogradov, 1962; (b) segundo Paterman, 1963, em Wedepohl, 1978] e sedimentares [(c) segundo Turekian e Wedepohl, 1961; (d) segundo diferentes autores em Wedepohl, 1978].

ROCHAS MAGMÁTICAS (ppm)				
ULTRABÁSICA	BÁSICAS	INTERMEDIÁRIAS	ÁCIDAS	
0,003	0,5	1,8	3,5	(a)
0,03	0,6	4,0	6,0	(b)
ROCHAS SEDIMENTARES (ppm)				
FOLHELHOS	CALCÁRIO	ARENITOS		
3,7	2,2	0,45		
3,7	2,0	1,02		

Conforme observado na Tabela 1, as discrepâncias entre valores em um determinado tipo de rocha (em particular nas magmáticas) são devidas principalmente as diferenças entre áreas de coleta. Contudo, em qualquer dos casos (a), (b), (c) e (d) pode-se verificar claramente que no caso das rochas magmáticas os “clarkes” vão aumentando das rochas ultrabásicas para as ácidas, e no caso das rochas sedimentares a relação é decrescente nos folhelhos, calcário e arenitos, nesta ordem.

Um caso típico de altas concentrações de urânio em pluton granítico foi observado no estudo realizado em El Misikat, Egito (ARAFA 2004), onde foram encontrados teores elevados de urânio, entre 497 e 8.856 ppm para esse tipo de rocha. Neste mesmo estudo, foi determinada a atividade específica de urânio em cinco diferentes localidades do Egito, tendo como parâmetro de pesquisa as rochas graníticas (Tabela 2). Por esta tabela verifica-se que as atividades apresentaram diferentes resultados que variam de localidade para localidade, devido à formação geológica da área e de fatores naturais.

Tabela 2: Atividades específicas do urânio em rochas graníticas do Egito (ARAFA, 2004).

LOCALIDADE	^{238}U (Bq.kg⁻¹)
Gabel El Majal	35,5 – 510,52
Gabel El Misikat	109,3 – 4.545,0
Gabel El Aradiya	5,26 – 336,70
Homret Waggat North	257,1 – 665,7
Homret Waggat South	308,2 – 1.523,6

A concentração média de urânio nos solos é geralmente de 2 ppm (aproximadamente 25 Bq.kg^{-1}) de ^{238}U (DIMOVA et al., 2003), podendo esta concentração, devido principalmente à formação geológica, variar de 0,5 a 5 ppm (HICKOX, 2001). Nos solos comuns, o urânio é encontrado no estado de oxidação +6. Em casos especiais, como por exemplo, solos pantanosos, onde os ambientes são redutores, pode ocorrer a formação de U^{4+} (SCHEFFER; SCHACHTSCHABEL, 1966; DUFF et al., 1997). A maior parte dos complexos sob condições de oxidação U^{6+} são mais estáveis do que a espécie U^{4+} (SHEPPARD et al., 2005); então, um aumento no estado de oxidação corresponde diretamente a um aumento na mobilidade do urânio no solo (LANGMUIR, 1978 apud LITAOR 1995; HICKOX, 2001). Portanto, o U^{4+} , relativamente imóvel em solução, possui uma forte tendência a hidrolisar, assim como de formar compostos de baixa solubilidade na água (GOMES, 1978). O U^{6+} , que quase sempre ocorre como radical uranilo (UO_2^{2+}), é bem mais móvel (MCKEE et al., 1987; SHEPPARD et al., 2005).

Deve-se, contudo observar que o potencial de oxidação do urânio exerce grande influência na mobilidade e fixação do urânio durante os processos de intemperismo. Portanto, ambientes redutores provocam a precipitação deste, que atinge o solo principalmente na forma de U^{6+} onde é adsorvido principalmente pela matéria orgânica, e por esta, reduzido para U^{4+} durante a sua decomposição (GOMES, 1978; LEVINSON et al., 1984; DUFF et al., 1997; SHEPPARD et al., 2005). A redução é causada em parte, por bactérias anaeróbicas, que ao decomporem a matéria orgânica, através do consumo do gás sulfídrico como aceptor de elétrons, um agente redutor, provoca a redução do urânio, produzindo enxofre e água, conforme reação abaixo (MCKEE et al., 1987; DUFF et al., 1997).



Nesta reação, observa-se que o urânio no estado de oxidação +6 no UO_3 , é reduzido pelo gás sulfídrico, liberado pela matéria orgânica, passando para o estado de oxidação +4 no UO_2 . O urânio pode também ser reduzido na presença de H_2 e CH_4 (DUFF

et al., 1997). Sobretudo a geologia, hidrologia, mineralização e fatores ambientais afetam diretamente a acumulação de urânio no solo (LEVINSON et al., 1984).

2.4.1.2 Ciclo geoquímico do urânio

A Figura 7 mostra esquematicamente o ciclo geoquímico do urânio. Verifica-se por ela que o ciclo começa e termina com uma rocha ácida (granito). Isso não significa que em rochas magmáticas o urânio só ocorra associado a granitos - ele pode também ocorrer associado a rochas intermédias (sienitos) e a carbonatitos, nestes o mineral uranífero é o pirocloro $(Ca, Na, U, Th, TR)_2(Nb, Ta)_2O_6(OH, F)$, onde o Ca pode ser substituído por U até 12% em peso (RAMDOHR; STRUNZ, 1967).

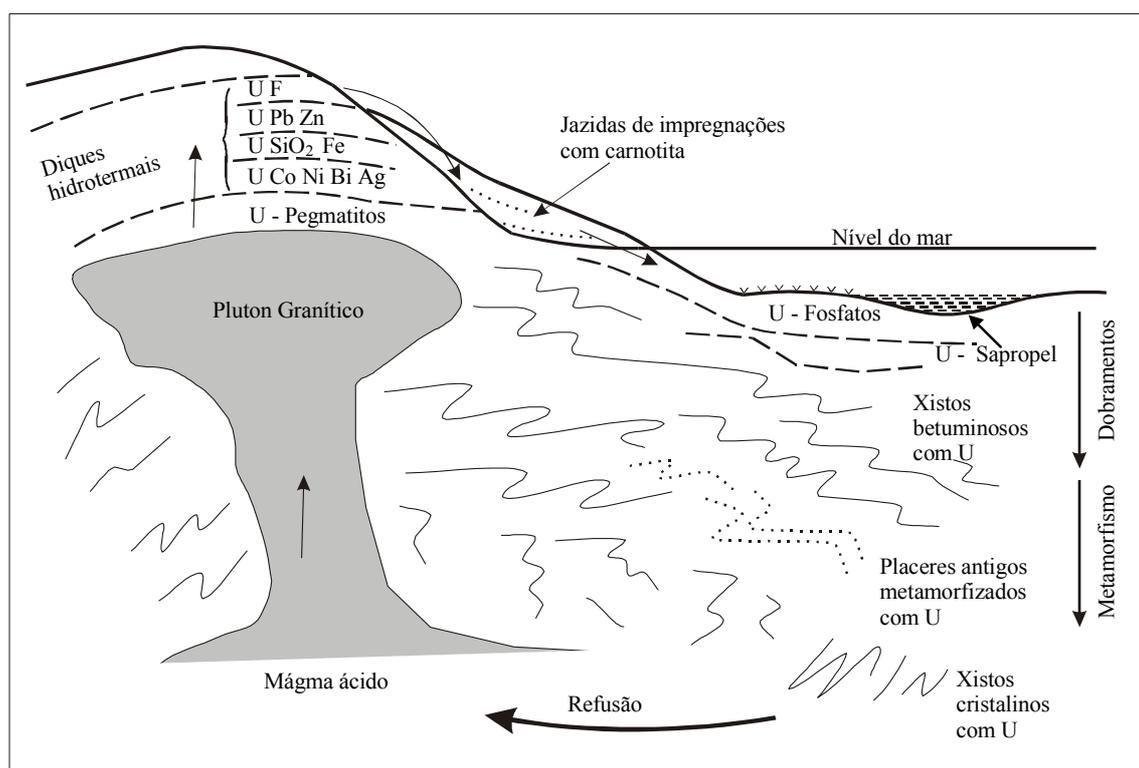


Figura 7: Ciclo geoquímico do urânio (PETRASHECK, 1961; PETRASCHECK; POHL, 1982).

Associados ao corpo granítico encontram-se geralmente pegmatitos, que freqüentemente contêm minerais de urânio (monazita, xenotimo, zircão, allanita, gadolinita, samarskita, uraninita, etc., e minerais secundários de urânio), e diques hidrotermais, em geral de quartzo, geralmente com pechblenda, uraninita ou coffinita (RANKAMA; SAHAMA, 1950).

Partindo destas rochas primárias, o urânio passa a ocorrer nas rochas delas derivadas - sedimentares e metamórficas. Entre as principais rochas sedimentares uraníferas continentais estão conglomerados com uraninita, monazita, etc., arenitos com impregnações de carnotita, por exemplo, para onde o urânio foi transportado por água subterrânea, rochas detríticas “placers” (paleoplacers) com uraninita, e areias de praia com monazita e xenotimo, resultantes principalmente da desagregação dos pegmatitos. Das rochas e substâncias de origem marinha, as fosforitas, onde o cálcio foi parcialmente substituído por urânio, e os sapropéis, com urânio adsorvido pela matéria orgânica e pela argila, são as mais importantes (RANKAMA; SAHAMA, 1950).

Em rochas metamórficas resultantes da transformação de rochas magmáticas e sedimentares ricas em urânio, as concentrações de urânio podem ser elevadas. As cálcio-silicáticas são geralmente pobres em urânio. No caso extremo do ultrametamorfismo, as diferentes rochas são fundidas e transformadas em magmas ao nível da crosta continental. Como a maior parte das rochas primárias da crosta continental é granítica (ácida), globalmente as rochas delas derivadas também o são e também o magma delas proveniente.

2.5 Rádio

2.5.1 Rádio na natureza

O rádio encontra-se disperso na natureza, tanto nos minerais como nas águas, porém existe em baixas percentagens, ou seja, em baixas concentrações, exceto em regiões

com altas concentrações de radioatividade natural, como por exemplo em rochas vulcânicas e em algumas regiões de mina de urânio (ARAFA, 2004). Suas maiores concentrações são encontradas nos minérios que contêm urânio e tório (GONSALVES, 1959).

Embora existam no meio ambiente quatro principais isótopos naturais do rádio, a saber: ^{223}Ra , pertencente à série do actínio, ^{224}Ra e ^{228}Ra , pertencentes à série do tório, e ^{226}Ra que pertence à série do ^{238}U , as determinações do ^{226}Ra e ^{228}Ra são as mais importantes, principalmente do ponto de vista geoquímico e de efeitos para a saúde humana (exposições radioativas e sua diadoquia² com o cálcio) (AKYIL et al., 2002). As taxas de exposição para radiação gama são apresentadas na Tabela 3, para alguns tipos de rochas frescas³ (ROTHER, 1959).

Tabela 3: Valores de taxas de exposições gama para diferentes rochas (ROTHER, 1959).

ROCHAS MAGMÁTICAS	
TIPO	TAXA DE ESPOSIÇÃO ($\mu\text{R.h}^{-1}$)
BÁSICAS	6 a 12
ÁCIDAS	10 a 28
ROCHAS SEDIMENTARES	
TIPO	TAXA DE EXPOSIÇÃO ($\mu\text{R.h}^{-1}$)
FOLHELHOS	8 a 12
ARENITOS	3 a 8
CALCÁRIO	2 a 6
FOSFORITAS	32 a 80
ROCHAS METAMÓRFICAS	
TIPO	TAXA DE EXPOSIÇÃO ($\mu\text{R.h}^{-1}$)
XISTOS E GNAISSES	6 a 14

Segundo o Comitê Científico das Nações Unidas Sobre os Efeitos da Radiação Atômica (UNSCEAR: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation), a atividade média de ^{226}Ra estimado na superfície do solo de áreas sem

² Diadoquia é a substituição de um elemento próprio do mineral por um outro elemento estranho, devido principalmente às semelhanças entre os raios iônicos (DANA, 1986).

³ Rocha fresca é a rocha não intemperizada, ou seja, sem alteração.

alterações radioativas é de $25,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$ (MALANCA et al., 1993). Para Rose et al. (1979) o teor médio de ^{226}Ra em solos é de 0,8 ppt.

Na natureza, o rádio ocorre no nível de oxidação +2. A sua mobilidade em soluções aquosas é moderada a baixa, sendo bem adsorvido por óxidos de ferro e por matéria orgânica (ROSE et al., 1979). Como elemento alcalino-terroso, suas propriedades químicas se assemelham às dos elementos deste grupo.

2.6 Métodos de determinação da composição mineralógica de rochas

2.6.1 Difractometria de Raios-X

A difratometria de raios X (DRX) é uma importante ferramenta para a investigação da estrutura fina da matéria. Essa técnica teve início em 1912 a partir da descoberta de Von Laue, segundo a qual os cristais difratam raios X. Essa técnica necessita dos conhecimentos prévios das propriedades dos raios X, assim como da geometria e estrutura dos cristais. Atualmente é empregada para a determinação de estruturas, análise química, determinação de orientação dos cristais e também na determinação do tamanho dos cristais (UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO, 2004).

A interação de raios X com cristais permite o uso do fenômeno de difração de raios X, que é praticamente uma reflexão. Sempre que ocorre uma coincidência de fase dos raios refletidos, há um correspondente aumento da amplitude e portanto da intensidade. Este processo é regido pela conhecida lei de Bragg (Equação 1).

$$n \times \lambda = 2 \times d \times \text{sen}\theta \quad (1)$$

onde n é um número inteiro; d é o espaço atômico interplanar; θ é o ângulo formado pelo raio incidente e o plano atômico de difração dos raios X no cristal, e λ é o comprimento de onda dos raios incidentes no cristal. Esta lei não leva em consideração o fenômeno da

refração de raios X, uma vez que tal efeito é muito pequeno e pode ser desprezado na maioria dos casos.

2.6.2 Análise modal

A análise modal de uma rocha permite a determinação da composição mineralógica quantitativa, atribuindo a cada mineral uma percentagem em relação ao volume total da rocha. Entretanto, se a rocha não contém minerais muito complexos, esta análise permite também o cálculo da composição química aproximada da rocha, a partir da composição química de cada mineral, previamente conhecida.

O equipamento de medida é constituído de um microscópio polarizante comum, e de um contador de pontos, interligado por cabo elétrico a um transportador elétrico (chariô). O contador permite a contagem de pontos correspondentes a cada mineral presente numa área limitada da lâmina fina de uma rocha. A área escolhida da lâmina é percorrida usando o chariô, que desloca a lâmina de 1/3 mm entre cada ponto contado (ROUBAULT, 1982). Ao término da contagem de uma linha, desloca-se à lâmina para próxima linha, esta paralela à anterior, com intervalo entre linhas de 1/3 mm. Desta forma é possível analisar toda a área escolhida da lâmina.

Quanto aos resultados, os registros de contagem total dos pontos correspondentes a cada mineral, armazenados no contador, fornecem imediatamente a composição centesimal em volume de cada mineral, estabelecendo a proporção entre o número de pontos correspondentes a esse mineral e o número total de pontos.

O número de lâminas a serem utilizadas para cada análise é determinado pelo “índice de Chayes” (IC) (ROUBAULT, 1982). Este índice é por convenção, o número de grãos dos minerais essenciais contados ao longo de uma ou duas linhas, totalizando um comprimento de 40 mm, e seu conhecimento permite a utilização de três gráficos padrões em função do erro analítico máximo tolerado para os constituintes essenciais (1,4; 2,0 e

2,4%). Esses diagramas fornecem o número de lâminas a serem utilizadas em função de IC e da superfície varrida em mm².

2.7 Espectrometria gama

A espectrometria gama permite a identificação de fontes potenciais de contaminação radioativa ambiental, natural ou artificial (SUJO et al., 2004) e utiliza atualmente, de preferência, os detectores de germânio hiperpuros (HPGe), também chamados de detectores de germânio intrínsecos, os quais apenas necessitam de resfriamento a nitrogênio líquido (-196°C) quando em operação, ao contrário dos detectores de germânio dopado com lítio, Ge(Li), que apresentam dificuldades operacionais, exigindo o resfriamento do detector mesmo quando este não está em funcionamento (TAUHATA et al., 2003). A operação do detector de Ge a baixa temperatura é para garantir uma região de semi-condução, pois em temperaturas elevadas os elétrons de valência do Ge adquirem energia suficiente para atingir a banda de condução (MELO, 1985).

As vantagens do uso da espectrometria gama com detector de Ge, é devido principalmente ao seu tempo de resolução (aproximadamente 10⁻⁸s), sua linearidade de resposta, numa ampla faixa de energia (MELO, 1985), rapidez nas análises e o número de informações obtidas em uma única análise. Os detectores HPGe são geralmente construídos na geometria cilíndrica ou coaxial, o que permite trabalhar com volumes maiores de material, em geral, necessários para a espectrometria gama.

Suas desvantagens são o elevado custo do detector, a necessidade de resfriamento com nitrogênio líquido, a deterioração do germânio com o uso (mesmo podendo atingir volumes ativos superiores a 200 cm³ na sua configuração coaxial), e sua baixa eficiência quando comparado com cristais de NaI(Tl) de mesmas dimensões (MELO, 1985).

Alguns trabalhos, entre eles, Adams et al. (1958 apud CULBERT; LEIGHTON, 1981), utilizaram a espectrometria gama na exploração mineral, focalizando a determinação de radionuclídeos, com elevadas emissões gama, que envolvem os fotopicos gama do ^{40}K (1.461 keV), do ^{214}Bi (609 keV), descendente do ^{238}U , e do ^{208}Tl (583 keV e 2.615 keV), descendente do ^{232}Th .

A determinação por espectrometria gama com detectores de elevada resolução, utilizando cristais de germânio hiperpuro, é um método de boa precisão para análise de radionuclídeos naturais em amostras ambientais, devido aos baixos níveis de radioatividade geralmente encontrados nessas amostras (MALANCA et al., 1993; GHIASSI-NEJAD et al., 2001; RÓDENAS et al., 2003; SUJO et al., 2004). O método é prático, não destrutivo, de baixo custo, e sua rapidez está intimamente ligada às concentrações dos radionuclídeos de interesse. Alguns métodos radiométricos como a espectrometria alfa, contagem por cintilação líquida, entre outros, ao contrário da espectrometria gama, envolvem vários processos trabalhosos no tratamento das amostras e custos adicionais com reagentes (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003).

Geralmente, o urânio no solo não apresenta todos os seus produtos de decaimento em equilíbrio radioativo, portanto, é de interesse conhecer o desequilíbrio de um determinado minério, para interpretação realista dos dados radiométricos, devendo-se dar especial importância ao desequilíbrio entre o ^{226}Ra e ^{238}U (PAIĆ et al., 1982).

O urânio pode ser determinado usando, espectrometria gama, pela medida indireta dos raios gama emitidos por seus descendentes, desde que estas emissões tenham energia e intensidade suficientes para serem detectadas (ALENCAR, 1982; PAIĆ et al., 1982). Neste caso, a medida do produto de decaimento é necessária, porque o urânio (^{238}U) não apresenta atividade gama suficientemente intensa para análise de rotina (AMARAL, 1987; DOWDALL et al., 2003), formando um pico pouco intenso, com energia de 49,55 keV e probabilidade de emissão gama de 0,064% (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003).

Os espectros das séries urânio-rádio (^{238}U), dos actínídeos (^{235}U), e do tório (^{232}Th), apresentam uma seqüência densa de picos γ e raios-X na faixa de 40 a 115 keV. Numa faixa posterior existem picos mais intensos, acima de 350 keV, e em faixas de energias maiores existem linhas da série urânio-rádio, como é o caso das energias de 609; 1.120,3 e 1.764,5 keV do ^{214}Bi . (ALENCAR, 1982).

As medidas radiométricas de urânio por meio de espectrometria gama, enfrentam alguns problemas, quanto à medida direta dos isótopos ^{235}U e ^{238}U , e por isso é necessário desenvolver técnicas de medidas que minimizem ou contornem a condição de equilíbrio radioativo, condição assumida nas determinações de urânio por meio da radioatividade dos descendentes do ^{238}U e da contagem gama do ^{235}U no equilíbrio $^{226}\text{Ra} - ^{235}\text{U}$ (AMARAL, 1987). A medida direta do ^{235}U , por meio do fotopico de 186 keV, requer informações sobre as condições de equilíbrio radioativo dos produtos de decaimento do ^{238}U , pelo menos até o ^{226}Ra (KIN, 1983 apud AMARAL, 1987). O ^{234}Th da cadeia de decaimento do ^{238}U , foi utilizado em alguns trabalhos (CHOUAK et al., 1978; PAIĆ et al., 1982; AMARAL, 1990) para medidas indiretas de urânio elementar.

O ^{226}Ra pode ser medido através dos fotopicos de 295 e 352 keV do ^{214}Pb , do fotopico de 609 keV do ^{214}Bi (MALANCA et al., 1993; SHENBER, 1997; MIAH et al., 1998; KARANGEOS et al., 2004; MALCZEWSKI et al., 2004), assim como do fotopico de aproximadamente 1.120 keV do ^{214}Bi (MYRICK et al., 1983; PAPP et al., 1997; MALCZEWSKI, et al., 2004).

Segundo Amaral (1987), para controlar o desequilíbrio radioativo, Porritt e Bone (1972), determinaram a intensidade do ^{235}U no fotopico de 186 keV no espectro gama de um determinado minério de urânio, a qual foi obtida por simples subtração da contribuição do ^{226}Ra , sendo esta contribuição calculada associando as contagens gama do ^{226}Ra aos fotopicos de 242, 295 ou 352 keV do ^{214}Pb da amostra de ^{226}Ra livre de urânio, em equilíbrio radioativo com seus descendentes e sob idênticas condições de medidas. A amostra permaneceu selada por um período de no mínimo trinta dias para que o ^{222}Rn entrasse em equilíbrio com o ^{226}Ra , o que torna esta metodologia não ideal para análises de

rotina. Anteriormente, tentando contornar os problemas causados pelo uso dos descendentes do ^{222}Rn , Chouak et al. (1978), fizeram uso da espectrometria gama independente do ^{222}Rn para determinar as contribuições de ^{226}Ra e ^{235}U no fotopico de 186 keV. Neste caso utilizaram os fotopicos de 63 e 1001 keV do decaimento do ^{234}Th e do $^{234\text{m}}\text{Pa}$, respectivamente, e através destes fotopicos gama foi possível determinar a atividade do ^{226}Ra .

A fração do ^{235}U , no fotopico complexo de 186 keV, foi determinada por Smith et al. (1981) diretamente da taxa de decaimento e das concentrações de ^{235}U e ^{238}U em uma amostra de urânio natural. Partindo de dados nucleares, calcularam que as emissões gama do ^{235}U e do ^{226}Ra formam o fotopico dubleto de 186 keV com 41,5% da intensidade devida à transição gama de 185,7 keV do ^{235}U e 58,5% da transição gama de 186,2 keV do ^{226}Ra , portanto a medida da diferença da energia entre estes dois fotopicos é de aproximadamente 488 ± 6 eV.

Outros trabalhos sobre análises radiométricas de urânio por espectrometria gama foram realizados por Paić et al. (1982) e Dowdall et al. (2003). Paić et al. (1982) determinaram a taxa absoluta de $^{226}\text{Ra}/^{235}\text{U}$ usando um detector de alta resolução. A intensidade gama do ^{235}U neste fotopico corresponde a um fator de 0,449, obtido experimentalmente. Seguindo a mesma linha de trabalho, Zaman e Chitumb (1983) usaram o fator 0,449 para determinar a relação entre o ^{226}Ra e o ^{235}U em uma amostra desconhecida, usando um padrão.

Vários autores, entre eles, Chouak et al. (1978); Lee, C. e Lee, K. (1980); Kin e Burnett (1983); Amaral (1987); Papachristodoulou et al. (2003); Karangelos et al. (2004), fizeram uso dos fotopicos de 63 e 93 keV do ^{234}Th para determinar a atividade do ^{238}U , pois este radionuclídeo necessita de um tempo relativamente curto para restabelecer o equilíbrio com o ^{238}U . Contudo, a contagem dos gamas de 63 e 93 keV do ^{234}Th está sujeita a interferência de raios-X e ocorre em região de alto “background Compton”. Estes autores constataram experimentalmente, que o fotopico de 63 keV apresenta menos interferência do que o de 93 keV. Na Tabela 5 estão apresentadas as energias, intensidades,

e núclídeos emissores de raios γ usados na determinação de diferentes radionuclídeos, utilizando-se o método de análise radiométrica por espectrometria gama.

Segundo Papachristodoulou et al. (2003), o pico de 63 keV é formado principalmente pela contribuição das emissões do ^{234}Th e ^{232}Th nas energias de 63,3 keV (4,8%) e 63,9 keV (0,023%), respectivamente, conforme apresentado na Equação 2 abaixo.

$$C(63) = C(^{234}\text{Th},63.3) + C(^{232}\text{Th},63.9) \quad (2)$$

onde $C(^A\text{X}, E_\gamma)$ é a taxa de contagem para as energias dos raios gama, E_γ , emitidos pelo núclídeo ^AX . Portanto, o pico de 93 keV, consiste de raios gama do ^{234}Th nas energias de 92,4 keV (2,8%) e 92,8 keV (2,8%), bem como do ^{227}Th na energia de 93,9 keV (1,37%) (PAPACHRISTODOULOU et al., 2003), conforme a Equação 3:

$$C(93) = C(^{234}\text{Th},92.4) + C(^{234}\text{Th},92.8) + C(^{227}\text{Th},93.9) \quad (3).$$

Tabela 4: Determinação de alguns radionuclídeos através de núclídeos emissores de raios γ (PAIĆ et al., 1982; PAPP et al., 1997).

NUCLÍDEO A SER DETERMINADO	NUCLÍDEO EMISSOR	ENERGIA γ (keV)	INTENSIDADE γ (%)
^{235}U	^{235}U	143,7	10,5
	^{235}U	163,4	4,7
	^{235}U	185,7	54,0
^{238}U	$^{234\text{m}}\text{Pa}$	1.001	0,59 ¹
	^{234}Th	63,0	3,9
	^{234}Th	93,0	5,57 ²
	^{235}U	185,7	57,5
^{226}Ra	^{226}Ra	186,0	3,28
	^{214}Pb	242,0	7,5
	^{214}Pb	295,2	19,2
	^{214}Pb	351,9	37,1
	^{214}Bi	609,3	46,1
	^{214}Bi	1.120,3	15,04

¹m = metaestável; ²Somatório das abundâncias gama das energias de 92,38 keV (2,57%) e 92,80 keV (3,00%) do ^{234}Th .

3 MATERIAIS E MÉTODOS

3.1 Geologia e Radiometria da área Venturosa

Segundo Cardoso (1978), existem na área do município de Venturosa (denominada Projeto Folha Venturosa), três variedades de rochas cálcio-silicáticas, a saber: uma verde-cinza clara, composta por diopsídio, plagioclásio (labradorita), titanita, um pouco de hornblenda e apatita; uma variedade verde-cinza médio, composta por diopsídio, plagioclásio (geralmente bytownita), calcita, hornblenda e titanita, e uma verde-escura, em geral granadífera, com hornblenda, diopsídio e plagioclásio (labradorita) ou ferrosalita, plagioclásio (labradorita ou bytownita) e hornblenda. Desta última rocha existe próximo à localidade de Panelas, município de Pedra, (8 km a SW de Venturosa) uma lente aflorante mineralizada em urânio, que estimulou o mapeamento geológico e radiométrico de toda a área correspondente à Folha Venturosa. Esta área está situada entre as coordenadas geográficas 08° 30' e 09° 00' S; 36° 30' e 27° 00' WGr, com uma superfície de 3.025 km², conforme carta topográfica elaborada pela SUDENE (Superintendência do Desenvolvimento do Nordeste), na escala 1:100.000 (CALHEIROS, 1977).

O urânio aparece na rocha em duas formas: em pequenos grãos opacos arredondados, disseminados principalmente no plagioclásio, diopsídio e hornblenda, onde provocaram em seu redor halos de isotropização (metamictos), e sob a forma de um pó amarelo (provavelmente autunita) em finos planos de fraturas que cortam a rocha. A radiometria mostrou que a mineralização de urânio desta rocha, que sempre apresenta radioatividade baixa, constitui uma grande exceção. É desconhecida a fonte fornecedora do urânio. A sua retenção, porém, foi feita provavelmente por adsorção numa lente de margas que mais tarde foi metamorfizada e deu origem à lente cálcio-silicática (CARDOSO, 1978).

Os valores do “background” da Folha Venturosa, adotados por Calheiros (1977) e Magalhães (1977), ou seja, valores ditos normais pelos autores, são apresentados na Tabela 4. Estes autores consideraram valores radiométricos anômalos para leituras realizadas com o cintilômetro, os que fossem iguais ou superiores a três vezes o valor do “background” para os diversos tipos de rochas aflorantes na área.

Tabela 5: Valores relativos de “Background” na Folha Venturosa (CALHEIROS, 1977; MAGALHÃES, 1977).

TIPO DE ROCHA	CINTILÔMETRO (cps)	\dot{X} (mR.h ⁻¹)
Aluvião	250	0,102
Biotita-Gnaiss	85	0,040
Calcário cristalino	90	0,042
Cálcio-silicática	110	0,050
Diabásio	100	0,045
Granito	170	0,070
Migmatito	160	0,066
Pegmatito	160	0,066
Solo	145	0,060

\dot{X} : Taxa de exposição a aproximadamente 5 cm da rocha (sobre a rocha).

Com exceção do valor superior a 15.000 cps (superior a 6 mR.h⁻¹) encontrado em blocos da rocha cálcio-silicática anfíbolítica no sítio Pannels, município de Pedra, os autores citados não encontraram, de modo geral, valores anômalos nos diferentes tipos de rochas. Outros valores elevados foram encontrados por Calheiros (1977), como é o caso do granito porfiróide e do solo correspondente, que, na localidade de Barbado, apresentaram leituras de até 400 cps (0,180 mR.h⁻¹) e 600 cps (0,300 mR.h⁻¹). Em Ingazeira, foram encontrados valores de até 340 cps (0,150 mR.h⁻¹) em migmatitos.

3.2 Localização da área e vias de acesso

A área de coleta fica situada no município de Pedra, região agreste do Estado de Pernambuco. A melhor maneira de chegar ao local é pela cidade de Venturosa (município de Venturosa), pois a área fica a 8 km na direção sul desta cidade (Figuras 8 e 9). O acesso

é feito pela estrada que conduz ao sítio Panelas (município de Pedra). O mapa da Figura 9 apresenta em detalhe a localização da área de estudo e suas vias de acesso.



Figura 8: Mapa de Pernambuco.

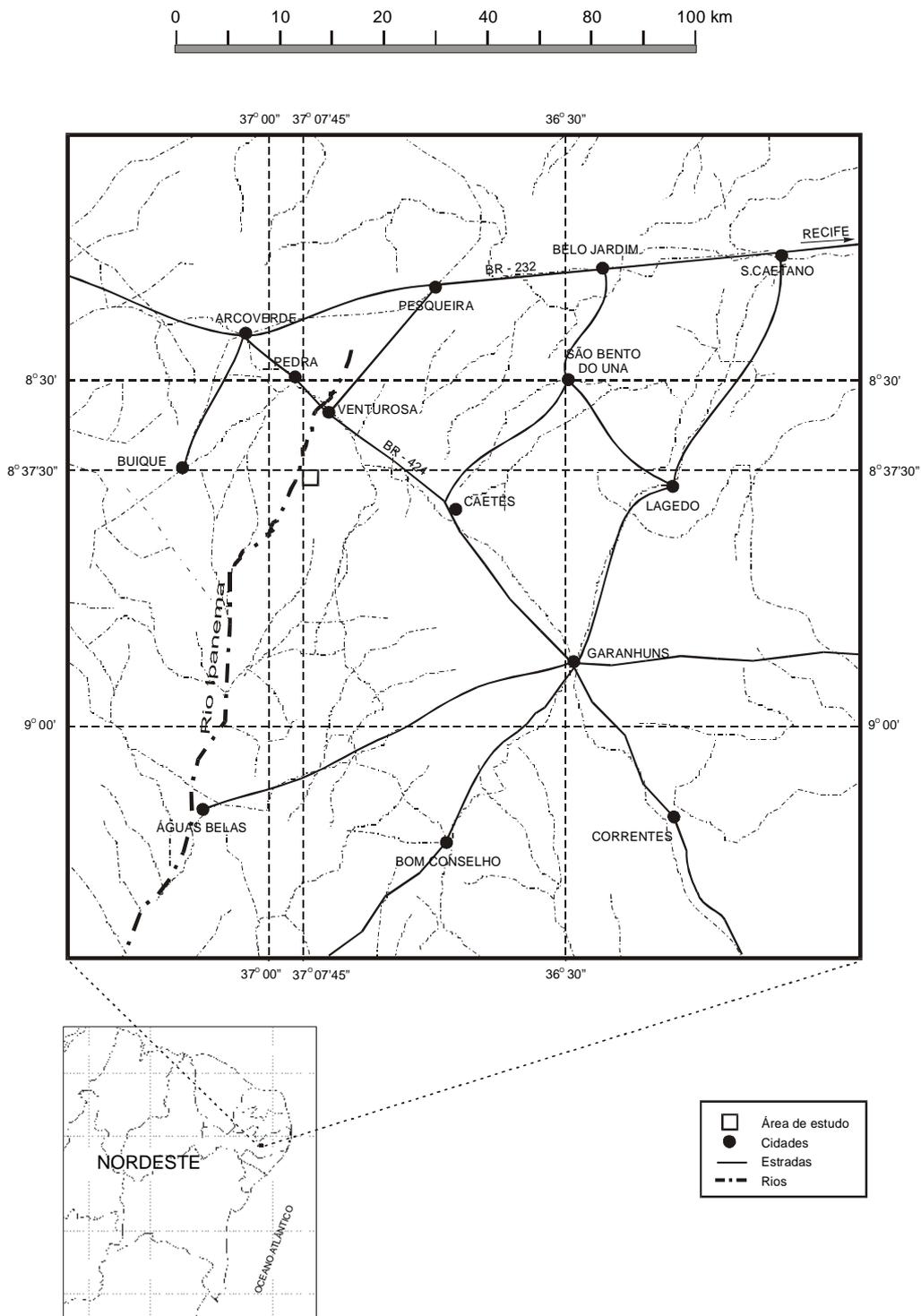


Figura 9: Mapa de localização da área e vias de acesso (SILVA et al., 2004).

3.3 Aspectos climáticos e econômicos

Em face às peculiaridades climáticas (clima semi-árido), a região em que se localiza a área estudada classifica-se como uma zona de transição, possuindo características comuns a três regiões naturais distintas: Agreste, Sertão e Caatinga, com predominância da primeira. O agreste, devido ao seu clima sub-úmido, com temperaturas amenas à noite, desenvolve uma vegetação constituída de árvores e arbustos baixos, composta principalmente por sacatinga (família das rosáceas), alecrim do campo, caroá, macambira, baraúna, mandacaru, xiquexique, coroa de frade, facheiro (família das cactáceas), agave, aveloz, jurema, umbuzeiro, catingueira e quipá (CALHEIROS, 1977).

As principais atividades agropecuárias desenvolvidas na região são: plantio de palma forrageira, usada como principal meio de sustento para os rebanhos de gado na estiagem, capim de corte, criação de gado bovino, caprino e suíno, bem como produção de leite e seus derivados.

3.4 A área anômala

A localização da área anômala foi possível graças ao mapeamento geológico e radiométrico apoiado por um convênio entre a UFPE e as Empresas Nucleares Brasileiras S.A (NUCLEBRAS), firmado em agosto de 1976 (LINS, 1976), com o objetivo de localizar e estudar geologicamente uma área radiometricamente anômala, detectada pela NUCLEBRAS em 1975 por aerocintilometria (FONTES, 1976).

Para realocar a área, utilizou-se, além dos mapas geológicos elaborados pela equipe da UFPE (CALHEIROS, 1977; MAGALHÃES, 1977), um GPS GARMIN e um cintilômetro SAPHYMO SRAT, SPP-2-NF que mede a atividade da radiação γ em cps, sem discriminar, contudo, o tipo da fonte (U, Th ou K).

O levantamento radiométrico foi executado ao longo de um trecho de aproximadamente 400 m a margem da estrada que liga a cidade de Venturosa ao sítio Pannels (município de Pedra), medindo-se a radiação de blocos de rochas (granitos e cálcio-silicática anfíbolítica). Assim, foi possível localizar duas pequenas áreas com blocos de cálcio-silicática anfíbolítica, com leituras de 3.500 cps ($1,5 \text{ mR.h}^{-1}$) e a outra, superior a 15.000 cps ($> 6 \text{ mR.h}^{-1}$).

Um dos pontos que apresentou leituras de até 3.500 cps na rocha cálcio-silicática anfíbolítica está localizado na fazenda F01, coordenadas L-W 0729004; N-S 9046061. Conforme relatos do proprietário desta fazenda, após 1975 ela foi algumas vezes investigada por equipes de pesquisa, inclusive da NUCLEBRAS, em busca de viabilidade econômica para exploração de urânio.

Com a ajuda de moradores, localizou-se um outro ponto anômalo na fazenda F02, coordenadas E-W 0728846 e N-S 9045758, 400 metros a S da F01, onde se encontrou a radioatividade mais elevada, com leituras acima de 15.000 cps, numa pequena área ao lado da casa do proprietário, em torno da qual existe plantio de palma forrageira. Esse ponto é de difícil localização devido ao plantio da palma e de escavações na ocorrência, em decorrência das tentativas de exploração do minério de urânio por parte da NUCLEBRAS. Próximo a essa anomalia e à estrada principal, foram coletadas cinco amostras da rocha cálcio-silicática, com leituras de 250 cps ($0,102 \text{ mR.h}^{-1}$) a 5.300 cps (aproximadamente $2,5 \text{ mR.h}^{-1}$).

3.5 Escolha da área de estudo

A escolha da área para estudo (Figura 10), foi realizada obedecendo a procedimentos específicos e ao estabelecimento de algumas normas. Priorizou-se para amostragem a área que não apresentasse obstruções, como por exemplo à presença de muitas árvores e arbustos, construções civis, solo muito remexido, ou seja, preferencialmente, áreas sem muitas alterações antropogênicas.

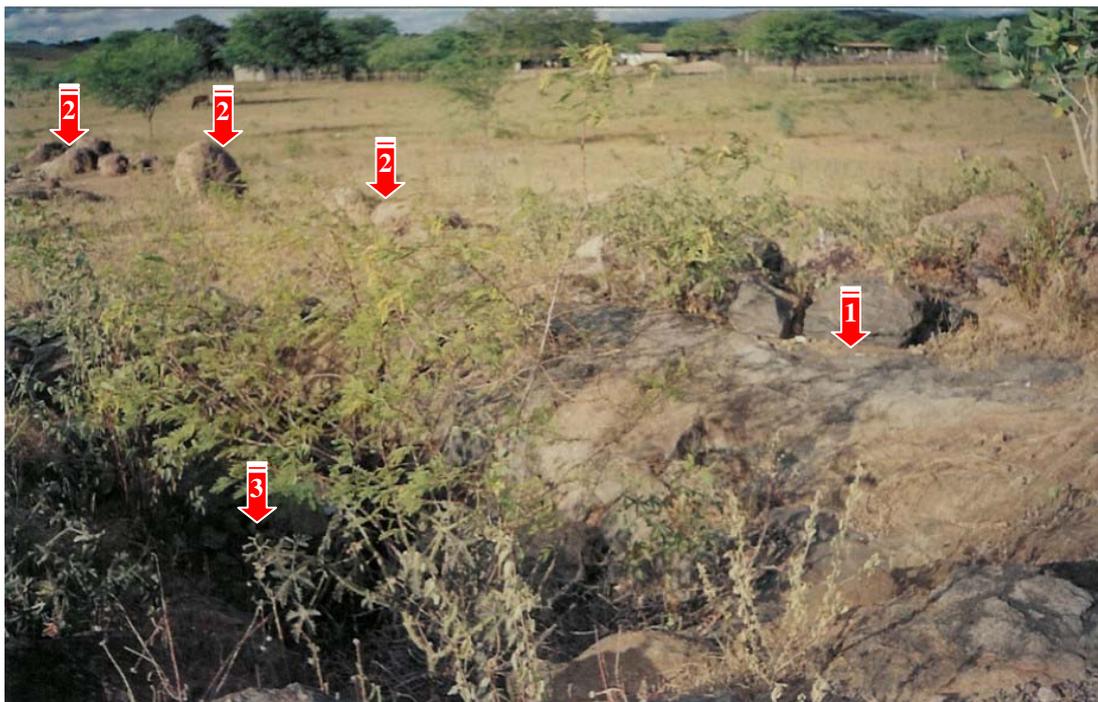


Figura 10: Ocorrência radioativa da fazenda F01. Rocha cálcio-silicática anfibolítica anômala (1), blocos de granito (2) e alterações antropogênicas (escavações) (3).

Na fazenda mencionada na Figura 10, foram coletadas inicialmente dez amostras de solo ao longo de um perfil, três de granito e duas de cálcio-silicática anfibolítica. Posteriormente foram coletadas mais 78 amostras de solo segundo uma malha, para melhor avaliação da distribuição de ^{238}U e do ^{226}Ra , conforme mapa de coleta (Figura 11).

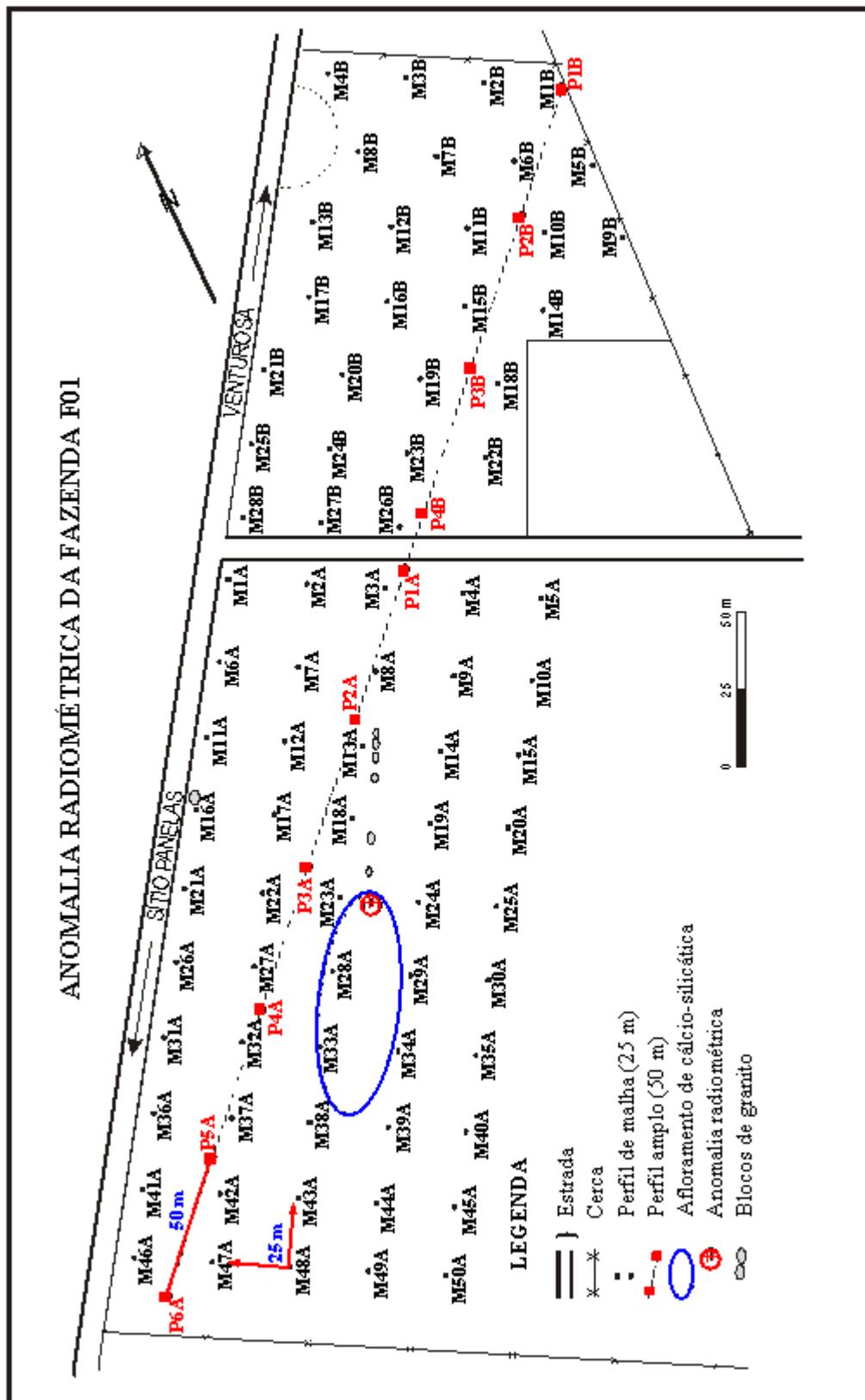


Figura 11: Mapa de amostragem (F01)

3.6 Procedimentos de amostragem e tratamento das amostras

3.6.1 Amostras de rocha

Foram coletadas amostras representativas dos principais tipos de rochas, a saber: cálcio-silicática anfibolítica e granito, as quais foram analisadas mineralogicamente e trituradas a uma granulometria adequada. Para a trituração foram utilizados britadores de mandíbulas, classificados aqui como grande e pequeno, conforme a capacidade de abertura das mandíbulas. No britador de mandíbulas grande, as amostras com mais de 10 cm de diâmetro foram trituradas de modo a obter fragmentos de no máximo 5 cm, os quais foram em seguida triturados no britador de mandíbulas pequeno. Os maiores fragmentos obtidos neste último processo de britagem apresentaram tamanhos da ordem de 1 a 2 cm. Após essa redução, levando em consideração as limitações dos britadores, esses fragmentos foram processados no moinho de rolos, em média três ciclos, reduzindo-se gradativamente a distância entre os rolos, até o limite de redução mínima. Obteve-se assim, amostras com granulometria bastante reduzida. Após essas reduções, foi realizado o peneiramento a seco num jogo de peneiras com aberturas de 2 mm, 0,296 mm e 0,148 mm.

Dessa forma, foi possível reduzir as amostras de rocha a uma granulometria inferior a 148 μm , ou seja, o passante na peneira de 100 meshes. Para esse procedimento foram utilizados os equipamentos do Laboratório de Tecnologia Mineral, pertencente ao Departamento de Engenharia de Minas da UFPE.

Após o peneiramento, as amostras foram acondicionadas em sacos plásticos devidamente etiquetados, e posteriormente pesadas para análise radiométrica no detector de germânio. A fração mais grosseira ($>0,148$ mm) também foi acondicionada em sacos plásticos e armazenada para reserva.

3.6.2 Amostras de solo

Como foi dito no item 3.5, a amostragem de solo foi realizada, inicialmente, ao longo de um perfil na fazenda F01, com intervalos de 50 m e profundidades variando de 20 a 40 cm. As amostras foram coletadas do horizonte C, devido ao tipo de clima, à topografia do terreno e ao uso agrícola do solo. Após a coleta, essas amostras foram acondicionadas em sacos plásticos e etiquetadas. Posteriormente foram coletadas amostras de solo em intervalos de 25 m, segundo uma malha (Figura 11).

No laboratório, foram então trituradas e peneiradas a uma granulometria inferior a 63 μm , separando-se assim as frações de argila (argilominerais). Para esta separação, o tratamento adotado inicialmente para cada amostra foi espalhar individualmente as amostras sobre uma lona, esmagando os torrões existentes com um rolo de madeira para se aproveitar o máximo possível da argila (argilominerais). Isto porque, à medida que os minerais de uma rocha vão se decompondo e se transformando em argila, os íons liberados vão ficando retidos nesta por adsorção (SCHULZ, 1965). Em seguida, esse material foi peneirado num jogo de peneiras com aberturas de 2 mm, 1 mm, e 63 μm , desprezando-se a fração acima de 2 mm (cascalho grosseiro). Para melhor aproveitamento da argila, passou-se também o rolo na fração retida na peneira de 1 mm. Após o peneiramento, cada fração inferior a 63 μm foi colocada num saco plástico e etiquetada. A fração inferior a 63 μm contém toda a argila (argilominerais), porque a granulometria destes é igual ou menor que 20 μm (MURAWSKI, 1972). Devido ao clima seco (semi-árido), uma boa parte das amostras foi coletada na forma de torrões consistentes, pouco friáveis, por isso, tiveram que ser submetidas a britador de mandíbulas e moinho de rolos, antes do peneiramento.

Assim como as amostras de rocha, as amostras de solo foram levadas para o Laboratório de Monitoração Ambiental do Departamento de Energia Nuclear da UFPE, onde foram acondicionadas em recipientes de polietileno com geometria padronizada, e hermeticamente fechados por um período de no mínimo trinta dias, para ser atingido o equilíbrio radioativo entre o ^{226}Ra e seus descendentes. Posteriormente o material foi

submetido à análise radiométrica para identificação dos radionuclídeos naturais de interesse (^{238}U e ^{226}Ra).

3.7 Procedimentos analíticos

3.7.1 Difractometria de Raios X (DRX)

A finalidade deste procedimento foi a determinação dos minerais de urânio presentes em uma amostra de rocha cálcio-silicática anfíbolítica, coletada na fazenda F02, assim como a identificação do concentrado de cor escura e alta suscetibilidade magnética presente nessa amostra. A escolha desta se deu pela elevada radioatividade, aproximadamente 5.300 cps ($2,5 \text{ mR.h}^{-1}$), e conseqüentemente, de uma maior concentração do mineral de urânio, e de uma identificação mais precisa por meio do espectro de DRX.

Uma amostra de rocha de 95 g, previamente moída a uma granulometria superior a $148 \mu\text{m}$, foi reduzida manualmente a uma granulometria inferior a $74 \mu\text{m}$, utilizando-se almofariz e pistilo, de modo que todo o conteúdo passasse na peneira de 200 meshes. Em seguida o pó foi eliminado através de decantação. O decantado foi levado à estufa a 100°C por aproximadamente 2 horas para obtenção do peso seco. Posteriormente, foi realizada a separação do concentrado com alta suscetibilidade magnética utilizando-se de um imã manual. Estas frações foram acondicionadas em recipientes de polietileno, e uma pequena alíquota encaminhada para o laboratório de DRX.

Para as análises de DRX, utilizou-se o equipamento de marca Siemens, modelo D-5.000, pertencente ao Setor de Raios X do Laboratório de Física da Universidade Federal de Pernambuco. O equipamento inclui o difratômetro, um gerador de alta voltagem, uma fonte de raios X, um sistema colimador do feixe de raios X, um sistema de detecção, impressora, e dispõe de um goniômetro controlado por computador. Este equipamento dispõe de programas de tratamento de dados tais como: procura automática

de picos, suavização da curva, procura dos possíveis minerais através de curvas padrões, e consequentemente a análise qualitativa da amostra.

As condições de operação para análise foram padronizadas, utilizando-se tubo de Cu, em voltagem de 40 kV, corrente de 40 mA, ângulo 2θ com varredura de 5 a 100° com leitura contínua de $0,02^\circ$ por segundo.

As pastilhas das amostras foram preparadas pela técnica de *back loading*, que consiste no pressionamento do pó contra a abertura da lâmina de alumínio, disposta sobre superfície lisa e firme de vidro, de forma que a amostra fique complanar com a superfície da lâmina (FAVA et al., 1999). O pó fica estável na abertura da lâmina, apesar de "suspenso", devido à pressão adequadamente aplicada. A face varrida por raios X é apresentada por meio de difratogramas, os quais, por comparação com padrões, definem a presença do mineral existente na amostra.

3.7.2 Análise modal

Para a análise microscópica em lâmina de rocha, foi utilizado um microscópio polarizante da marca Karl Zeiss Jena, modelo Amplival, e para a contagem de pontos um contador Jswift & Son London, ambos pertencentes ao Departamento de Geologia da Universidade Federal de Pernambuco. Para a captura de imagens foi utilizado um microscópio comum, marca Leitz Wetzlar, modelo MPV2, com câmara digital KODO KC-512-NT e "software" Leica Qwin Lite, v 2.6, que permite automaticamente a captura da imagem. Este sistema pertence à Fundação HEMOPE (Hematologia e Hemoterapia de Pernambuco). Para confecção da lâmina foi utilizada uma amostra da rocha cálcio-silicática anfibolítica com atividade de 1.000 cps, medida com o cintilômetro, coletada na fazenda F01.

3.7.3 Eficiência de contagem

Para a determinação da eficiência de contagem, foi utilizado um padrão líquido de ^{152}Eu , que apresenta meia-vida física de aproximadamente 12,7 anos (ERDTMANN; SOYKA, 1979), com atividade de $43,389 \text{ Bq.ml}^{-1}$, calculada pela Equação 4 com base na data de referência do padrão. Para realização do cálculo da atividade citada, foi utilizado como referência a atividade inicial de $46,729 \text{ Bq.ml}^{-1}$, certificada pelo IRD (Instituto de Radioproteção e Dosimetria, Rio de Janeiro).

$$A = A_0 \times e^{\frac{-\ln 2}{t_{1/2}} \times t} \quad (4)$$

onde A é a atividade que se deseja calcular, com base na atividade inicial A_0 , e na constante de decaimento radioativo, λ .

A escolha desse padrão se deve ao fato de ser considerado uma “multi-fonte” gama, pois emite diferentes energias gama, que variam aproximadamente de 39 keV a 2 MeV (ERDTMANN; SOYKA, 1979). Para reduzir o efeito da auto-absorção de energia, uma alíquota de 50 ml do padrão de ^{152}Eu foi adicionada a 200 g da matriz de solo, previamente analisada no detector de germânio por um tempo de contagem de 43.200 segundos. Esta auto-absorção gama ocorre naturalmente e é significativa em baixas energias. Para altas energias este efeito é praticamente insignificante (CULBERT; LEIGHTON, 1981).

Em seguida a mistura foi para a estufa a 60°C por aproximadamente 24 horas, e ao término desse tempo homogeneizada, acondicionada em recipiente de polietileno, e contada no detector gama. Para este procedimento foram adotadas as mesmas condições de análise das amostras, tais como: granulometria da matriz de solo, massa, geometria do recipiente, geometria de posição para contagem, bem como o tempo de contagem. Ao final deste procedimento, foi efetuado o cálculo das contagens líquidas do padrão para os níveis de energia do ^{152}Eu , com base nas medidas gama da matriz e da mistura (matriz + padrão).

3.7.4 Sistema de detecção gama

O sistema de medidas (Figura 12), é composto por um detector de germânio hiperpuro, HPGe, com janela de berílio, 4,54 cm de diâmetro e volume ativo⁴ de 41,1 cm³. A Figura 13a apresenta um modelo representativo, segundo Ródenas et al. (2003). Este equipamento apresenta uma resolução de 1,77 keV em 1.332 keV para o ⁶⁰Co, eficiência intrínseca de 27% e está acoplado a um MCA (“multichannel analyzer”) Canberra com 8.192 canais e “software” Genie-2000 Canberra. O analisador multicanal permite a transformação dos pulsos lineares em sinais digitais, realizando o processamento de separação por intervalos de energia. O resultado é apresentado no monitor do computador na forma de um gráfico que correlaciona o número de contagens e a amplitude de pulso (energia). O software permite o processamento e a manipulação do espectro. Para reduzir os efeitos da radiação de fundo, o detector está envolvido por uma blindagem de chumbo de aproximadamente 6,5 cm de espessura e uma superfície interna delgada constituída de latão (Figura 13b).

Este sistema apresenta os seguintes dispositivos: fonte de tensão, pré-amplificador, amplificador linear, contador, analisador multicanal e computador, conforme ilustrado no diagrama de blocos⁵ da Figura 14. Com esse sistema pode-se determinar simultaneamente além dos radionuclídeos presentes nas amostras, suas atividades.

⁴ O volume ativo do detector é a região de depleção, onde as cargas formadas pela interação com a radiação são rápidas e eficientemente coletadas pelo detector.

⁵ O diagrama de blocos é a forma utilizada para se representar uma instrumentação, onde cada módulo do sistema de medidas é representado por um elemento gráfico (TAUHATA et al. 2003).



Figura 12: Foto do sistema de medidas (Laboratório de Instrumentação Nuclear, Departamento de Energia Nuclear - UFPE).

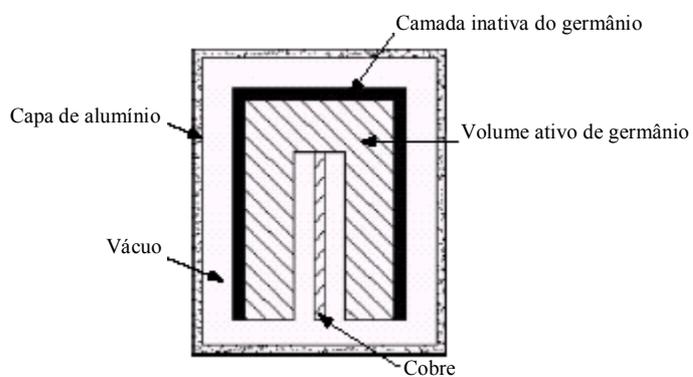


Figura 13a: Esquema do modelo do detector (RÓDENAS et al., 2003).



Figura 13b: Detector HPGe na blindagem (ENV. MONITORING, 2004).

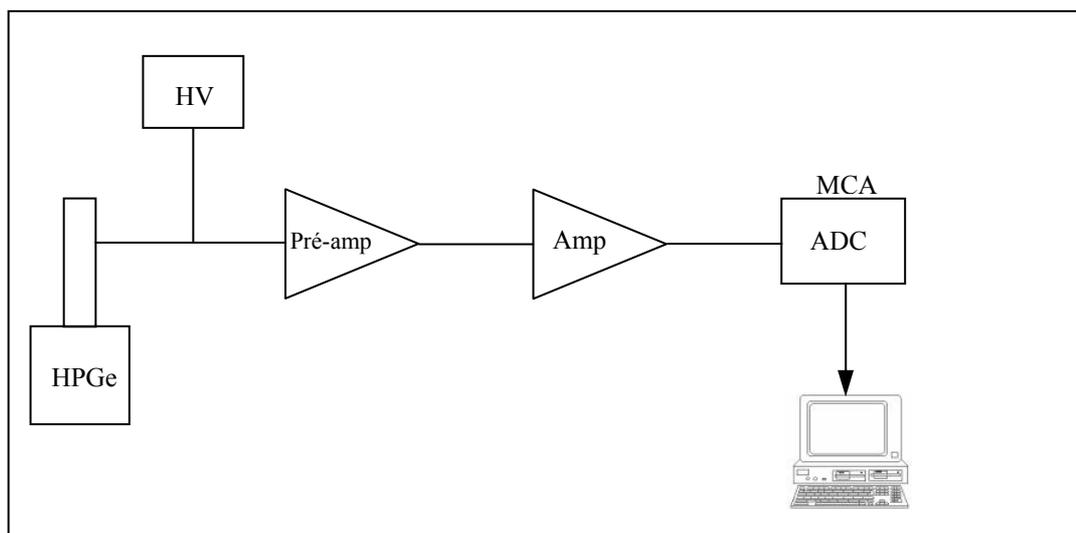


Figura 14: Diagrama de blocos do sistema de medidas.

3.8 Técnica de análise

Para as análises por espectrometria gama, as amostras foram homogeneizadas (KANNAN et al., 2002) a fim de se obter uma distribuição uniforme dos minerais presentes, padronizando-se as massas, o tempo de contagem e a geometria dos recipientes de polietileno utilizados no detector de germânio. A técnica de análise é não destrutiva e consiste na determinação das concentrações de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de solo e rocha por meio de um sistema de espectrometria gama, pertencente ao Departamento de Energia Nuclear da Universidade Federal de Pernambuco, conforme ilustrado na Figura 12.

As análises foram iniciadas com as amostras de solo. Cada amostra pesando 200 g, foi armazenada em recipiente de polietileno cilíndrico de capacidade volumétrica igual a 210 cm^3 , com diâmetro de aproximadamente 6,5 cm e altura igual a 8 cm, hermeticamente fechado, com a mesma geometria do recipiente utilizado para calibração da eficiência (KANNAN et al., 2002) e contadas no detector por um período de 43.200 segundos (12 horas). Quanto às amostras de rocha, foram preparadas como descrito no item 3.6.1, homogeneizadas, e usadas 200 g de cada uma no HPGe, adotando-se os

mesmos critérios de contagem utilizados para solo, com exceção do tempo de contagem que foi de 3.600 segundos, devido à alta radioatividade nessas amostras.

Em um período de trinta dias, as amostras seladas atingiram o equilíbrio radioativo secular entre ^{226}Ra , ^{214}Pb e ^{214}Bi (PAPP, 1997; KANNAN et al., 2002), ou seja, entre os radionuclídeos de meias-vidas curtas de interesse para análise. Para estas medidas, foram usados os fotopicos gama do ^{234}Th na energia de 63 keV para avaliar a concentração do ^{238}U , e por meio dos fotopicos de 352 e 609 keV do ^{214}Pb e ^{214}Bi , respectivamente, foi possível avaliar a concentração do ^{226}Ra nas amostras (SHENBER, 1997; MIAH et al., 1998; KARANGELOS et al., 2004). Essa técnica além de baixo custo provou ser eficaz em vista da quantidade de informações obtidas (DIMOVA et al., 2003).

O método de medida é absoluto, tem como parâmetro básico a aplicação da Equação 5 (TZORTZIS et al., 2003) e utiliza apenas um padrão, por meio do qual, é possível determinar as eficiências de contagens para as energias de 63, 352 e 609 keV, bastando para tanto obedecer às mesmas condições de contagem para todas as medidas.

$$A = \frac{C}{\epsilon \times t \times I_{\gamma} \times M} \quad (5)$$

onde **A** é a atividade específica para o radionuclídeo em consideração (Bq.kg^{-1}), **C** é a área total do pico do radionuclídeo (contagens), determinada experimentalmente; ϵ é a eficiência de contagem para a energia específica considerada; **t** é o tempo de contagem (s); I_{γ} é a abundância gama percentual do radionuclídeo em consideração, e **M** a massa da amostra em quilogramas (kg).

Utilizando-se a Equação 6, foi possível os cálculos das eficiências de contagens, com base na área de cada fotopico **C**, do tempo de contagem **t** e da atividade gama específica do radionuclídeo padrão, **A**. As unidades de medida para atividade e volume,

dependem, sobretudo, do estado físico da fonte padrão, neste caso padrão líquido, $A = Bq \cdot ml^{-1}$, considerando-se um volume V em ml .

$$\varepsilon = \frac{C}{A \times t \times I_{\gamma} \times V} \quad (6)$$

Para a contagem do BG, foi usado no detector um recipiente de polietileno vazio e com a mesma geometria do recipiente utilizado para contagem das amostras, obedecendo ao mesmo tempo de contagem (MALANCA et al., 1993). No final, esta contagem foi subtraída da contagem de cada amostra analisada (MCAULAY; MORAN, 1988; SANTOS; MARQUES, 2003).

3.9 Limite de detecção (LD)

Os limites de detecção para as energias de 63, 352 e 609 keV foram calculados pela Equação 7 (SILVA; MAZZILLI, 2005), utilizando 200 g de uma amostra de solo com baixa radioatividade em um tempo de contagem de 43.200 s.

$$LD = \frac{4,66\sqrt{C}}{\varepsilon \times I_{\gamma} \times M \times t} \quad (7)$$

onde 4,66 é uma constante para um limite de confiança de 95%, C é a área total do pico do radionuclídeo (contagens); ε é a eficiência de contagem para cada energia específica detectada; t é o tempo de contagem (s); I_{γ} é a abundância gama percentual do radionuclídeo em consideração, e M a massa da amostra (kg).

Com base nesses parâmetros, foi possível a realização dos cálculos dos limites de detecção do equipamento para as energias em consideração, conforme apresentado na Tabela 6. Por esta tabela observa-se que o ^{226}Ra apresenta um limite de detecção menor que o urânio, com LD médio de $2 Bq \cdot kg^{-1}$.

Tabela 6: Limites de detecção das atividades do ^{238}U e ^{226}Ra

ENERGIA (keV)	LD (Bq.kg⁻¹)
63	7
352	2
609	2

4 RESULTADOS E DISCUSSÃO

4.1 Monitoração de área

Na monitoração de área foi possível realizar uma análise radiométrica prévia, principalmente nos diferentes blocos de rochas aflorantes na área. Os valores radiométricos variaram entre 60 cps para solo a valores superiores a 15.000 cps em rocha. A Tabela 7 apresenta os resultados das medidas radiométricas executadas com o cintilômetro nos diversos pontos de coleta nas áreas anômalas (fazendas F01 e F02). As maiores medidas foram encontradas na rocha cálcio-silicática anfíbolítica, principalmente na fazenda F02, onde foi localizada a maior anomalia radioativa.

Tabela 7: Medidas radiométricas com cintilômetro nas áreas anômalas (Fazendas F01 e F02).

LOCAL	AMOSTRA	MEDIDAS IN SITU (cps)
F01	Solo	60
F01	Solo	65
F01	Solo	70
F01	Solo	75
F01	Solo	80
F01	Granito	60
F01	Granito	80
F01	CSA	250
F01	CSA	650
F01	CSA	1.000
F02	CSA	2.000
F02	CSA	5.300
F02	CSA	> 15.000

CSA = Cálcio-silicática anfíbolítica

Durante a monitoração, foi observada a predominância do efeito de massa no corpo da rocha aflorante e interferências das medidas em áreas próximas à rocha anômala,

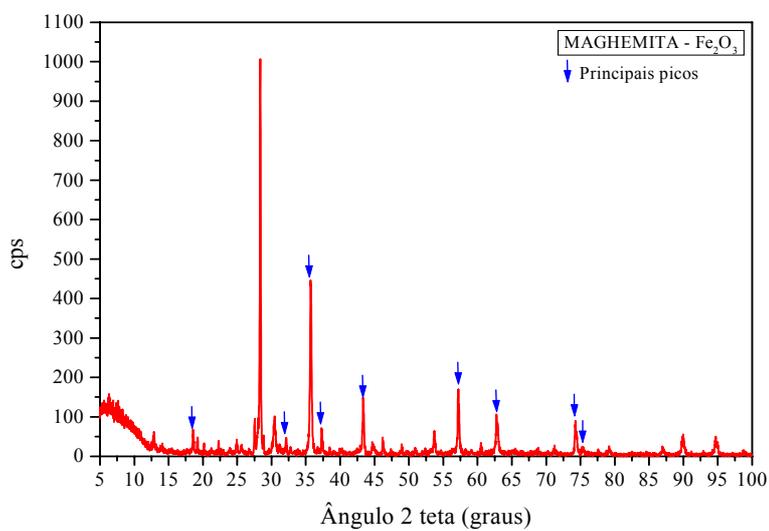
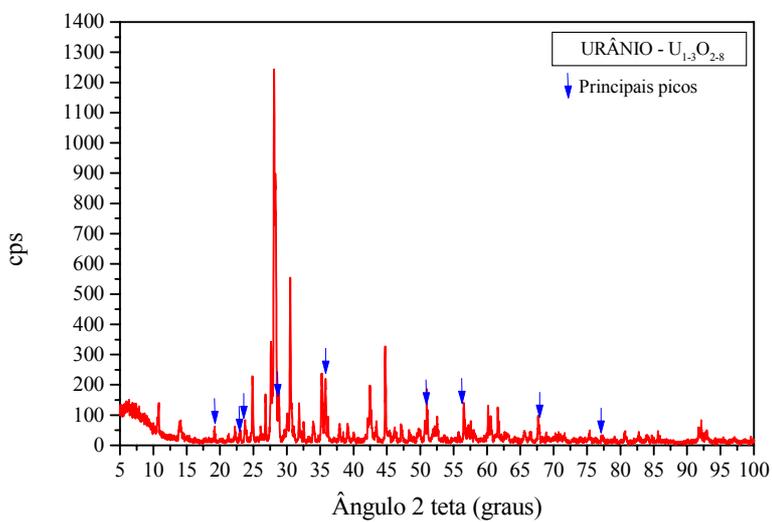
devido a alguns fatores predominantes como: sensibilidade do equipamento de medida e as altas taxas de contagem na rocha anômala. Com base nesses dados, foram estabelecidos os critérios para as análises mineralógicas, geoquímicas e radiométricas da área.

4.2 Identificação mineralógica

4.2.1 Análise por Difratomia de Raios X (DRX)

As Figuras 15 e 16 apresentam os difratogramas obtidos na análise da rocha de 5.300 cps, coletada na fazenda F02. A análise do difratograma representado na Figura 15 mostrou tratar-se de maghemita (Fe_2O_3), mineral de cor escura e alta susceptibilidade magnética. Para interpretação destes dados, foi realizada uma análise dos principais picos obtidos no difratograma com os valores já existentes na literatura.

Pela análise detalhada do difratograma correspondente à Figura 16, foi possível caracterizar o mineral existente nesta rocha como sendo pertencente à série $\text{U}_{1-3}\text{O}_{2-8}$, ou seja, uma variabilidade de óxidos de urânio (uraninita parcialmente oxidada). Uma das principais dificuldades na interpretação destes dados, foi devida às interferências dos minerais essenciais da rocha, presentes em elevadas concentrações. Os principais picos do difratograma da Figura 16, para o urânio, apresentam baixa intensidade, e na maioria dos casos são interferidos pelos picos dos minerais essenciais com maiores intensidades.

Figura 15: Difratoograma DRX para Fe_2O_3 .Figura 16: Difratoograma DRX para $\text{U}_{1.3}\text{O}_{2.8}$.

4.2.2 Análise modal

Na análise microscópica da lâmina observou-se a presença de halos metamictos em torno de núcleos opacos negros com 15 μm de diâmetro médio, formados no diopsídio, plagioclásio e hornblenda (Figura 17). Estes halos permitem caracterizar a presença de material radioativo, cuja radiação torna isotrópica ao seu redor, a rede cristalina do grão hospedeiro.

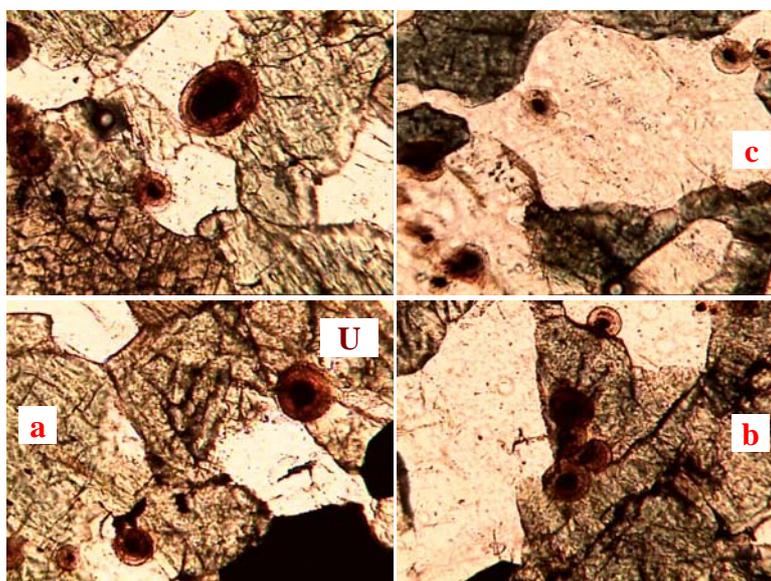


Figura 17: Fotos microscópicas de quatro posições de uma lâmina da rocha cálcio-silicática anfibolítica da fazenda F01 (1.000 cps), com aumento de 100x. Grãos de uraninita (pretos) circundados por halos metamictos (castanho-avermelhados) em diopsídio [castanho claro (a)], hornblenda [castanho escuro (b)], e em plagioclásio [grãos claros (c)]. Diâmetro do núcleo U = 15 μm .

A análise modal forneceu: 48,63% de plagioclásio (75% An = bytonita); 23,73% de piroxênio; 21,23% de anfibólio; 5,31% de maghemita; 0,73% de apatita, e 0,39% de uraninita (em média). Tendo como parâmetro básico o peso específico da rocha de aproximadamente 3,2 g.ml^{-1} , determinado experimentalmente (Equação 17 - apêndice), a densidade média da uraninita de 9,35 g.ml^{-1} (DANA, 1986), e o teor médio de urânio na uraninita ($\text{UO}_2 - \text{U}_3\text{O}_8$) de 86,5%, calculado estequiometricamente, foi possível calcular o

teor aproximado de urânio na amostra considerada, como sendo de 0,9857% ou seja, 9.857 ppm. A análise microscópica permitiu ainda classificar a rocha anômala como sendo uma cálcio-silicática anfíbolítica, um tipo de rocha metamórfica que normalmente não apresenta urânio associado (WEDEPOHL, 1978), exceção encontrada no presente estudo. Presume-se que originalmente existia uma lente de marga cuja argila adsorveu quantidade elevada de urânio proveniente de fonte desconhecida. Posteriormente, por intrusão de um magma granítico durante o processo de metamorfismo regional, essa lente foi transformada na atual rocha cálcio-silicática.

4.3 Análise por espectrometria gama

4.3.1 Cálculo da eficiência de contagem

A Figura 18 apresenta a curva de eficiência determinada experimentalmente com base na equação 6 e do procedimento descrito no item 3.7.3. Os dados experimentais que compõem essa curva, foram introduzidos num “software”. Por meio deste, obteve-se uma relação (Equação 8), que fornece as eficiências de contagem em diferentes níveis de energia (curva empírica), e a correspondente curva de ajuste (Figura 18).

$$\epsilon_2 = \frac{a_1}{a_1 \cdot a_2} (e^{-a_2 x} \cdot e^{-a_1 x}) \quad (8)$$

onde ϵ é a eficiência de contagem, a_1 e a_2 são parâmetros estatísticos para o ajuste teórico da curva baseada no teste qui-quadrado ($\chi^2 = 2,0 \times 10^{-5}$) e x a energia para a qual deseja-se determinar a eficiência.

Conforme o gráfico da Figura 18, a baixas energias as oscilações das interferências são maiores, enquanto que a altas energias há uma clara tendência à estabilidade, que se traduz num melhor ajuste da curva teórica com a curva empírica. Isto permite concluir que, para as eficiências estabelecidas nas energias de 63 e 93 keV do

^{234}Th , o erro é relativamente maior, devido principalmente às interferências nessas regiões. Desta forma, foi constatada uma inviabilidade para a utilização da eficiência na energia de 93 keV, em decorrência dos problemas relatados no item 2.7. As eficiências determinadas para as energias de 352 keV do ^{214}Pb e 609 keV do ^{214}Bi , são precisas. Com base nesses resultados, foram estabelecidas as eficiências de contagem para as energias específicas de 63, 352 e 609 keV, utilizadas para os cálculos das atividades.

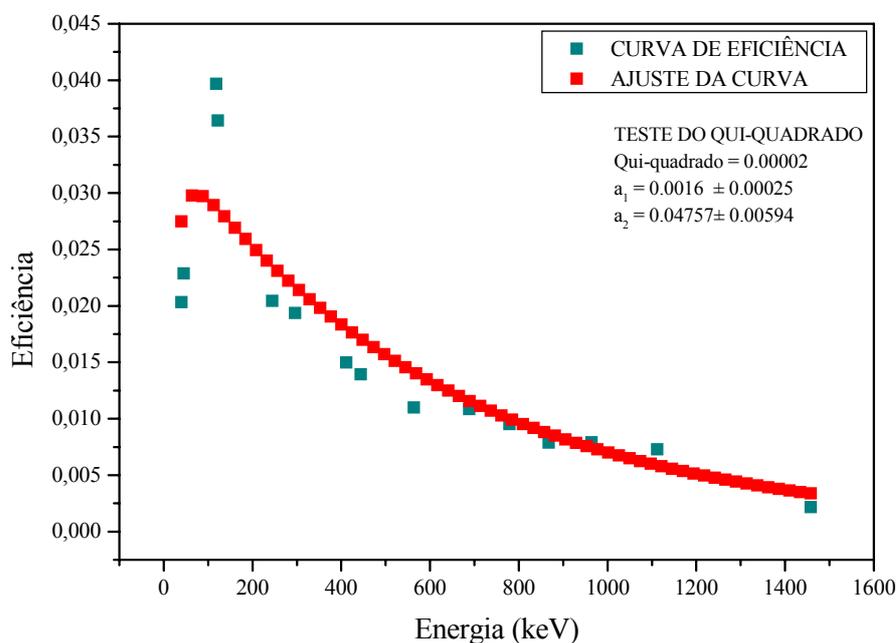


Figura 18: Curva de eficiência para ^{152}Eu .

Devido a estas interferências, os valores estabelecidos para a energia de 63 keV, foram calculados com base na curva empírica, pois ocorrem grandes discrepâncias entre os valores empírico e teórico em baixos níveis de energia. Nas energias de 352 e 609 keV, ocorre praticamente uma coincidência de valores entre as curvas empírica e teórica, dessa forma foram adotadas as médias destas eficiências para estas energias.

4.3.2 Cálculo das atividades

As Tabelas 8 e 9 apresentam as atividades específicas do ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de solo e rocha, respectivamente, assim como a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$.

Tabela 8: Atividades específicas do ^{238}U e ^{226}Ra no solo, e a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ na fazenda F01.

AMOSTRA	^{238}U (Bq.kg ⁻¹)	^{226}Ra (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$
P1A(1)	91 ± 7	51 ± 1	1,8
P2A(2)	127 ± 10	65 ± 2	2,0
P3A(3)	40 ± 3	42 ± 1	1,0
P4A(4)	42 ± 3	30 ± 1	1,4
P5A(5)	57 ± 4	32 ± 1	1,7
P6A(6)	97 ± 7	71 ± 2	1,4
P1B(7)	56 ± 4	37 ± 1	1,5
P2B(8)	122 ± 9	51 ± 1	2,4
P3B(9)	87 ± 7	62 ± 1	1,4
P4B(10)	95 ± 7	39 ± 1	2,4
M1A(11)	82 ± 6	50 ± 1	1,6
M2A(12)	84 ± 6	46 ± 1	1,8
M3A(13)	105 ± 8	55 ± 1	1,9
M4A(14)	85 ± 6	44 ± 1	1,9
M5A(15)	88 ± 7	54 ± 1	1,6
M6A(16)	82 ± 6	41 ± 1	2,0
M7A(17)	56 ± 4	38 ± 1	1,5
M8A(18)	58 ± 4	33 ± 1	1,8
M9A(19)	88 ± 7	45 ± 1	1,9
M10A(20)	107 ± 8	48 ± 1	2,2
M11A(21)	45 ± 3	24 ± 1	1,9
M12A(22)	69 ± 5	47 ± 1	1,5
M13A(23)	135 ± 10	73 ± 2	1,9
M14A(24)	74 ± 6	53 ± 1	1,4
M15A(25)	49 ± 4	38 ± 1	1,3
M16A(26)	114 ± 9	35 ± 1	3,2
M17A(27)	48 ± 4	58 ± 1	0,8
M18A(28)	247 ± 19	219 ± 5	1,1
M19A(29)	109 ± 8	58 ± 1	1,9
M20A(30)	122 ± 9	45 ± 1	2,7
M21A(31)	44 ± 3	23 ± 1	1,9
M22A(32)	71 ± 5	60 ± 1	1,2
M23A(33)	63 ± 5	58 ± 1	1,1

continuação da Tabela 8

M24A(34)	148 ± 11	159 ± 4	0,9
M25A(35)	86 ± 7	55 ± 1	1,6
M26A(36)	32 ± 2	28 ± 1	1,1
M27A(37)	70 ± 5	49 ± 1	1,4
M28A(38)	118 ± 9	114 ± 3	1,0
M29A(39)	123 ± 9	69 ± 2	1,8
M30A(40)	92 ± 7	46 ± 1	2,0
M31A(41)	43 ± 3	31 ± 1	1,4
M32A(42)	94 ± 7	46 ± 1	2,1
M33A(43)	164 ± 12	147 ± 3	1,1
M34A(44)	127 ± 10	108 ± 3	1,2
M35A(45)	71 ± 5	41 ± 1	1,7
M36A(46)	22 ± 2	14 ± 1	1,5
M37A(47)	33 ± 2	25 ± 1	1,3
M38A(48)	119 ± 9	90 ± 2	1,3
M39A(49)	268 ± 20	367 ± 8	0,7
M40A(50)	97 ± 7	41 ± 1	2,4
M41A(51)	65 ± 5	29 ± 1	2,2
M42A(52)	88 ± 7	50 ± 1	1,8
M43A(53)	121 ± 9	60 ± 1	2,0
M44A(54)	63 ± 5	48 ± 1	1,3
M45A(55)	52 ± 4	54 ± 1	1,0
M46A(56)	66 ± 5	40 ± 1	1,7
M47A(57)	94 ± 7	42 ± 1	2,3
M48A(58)	41 ± 3	61 ± 1	0,7
M49A(59)	91 ± 7	43 ± 1	2,1
M50A(60)	56 ± 4	52 ± 1	1,1
M1B(61)	56 ± 4	37 ± 1	1,5
M2B(62)	50 ± 4	32 ± 1	1,6
M3B(63)	97 ± 7	45 ± 1	2,2
M4B(64)	80 ± 6	44 ± 1	1,8
M5B(65)	118 ± 9	56 ± 1	2,1
M6B(66)	137 ± 10	68 ± 2	2,0
M7B(67)	83 ± 6	52 ± 1	1,6
M8B(68)	80 ± 6	57 ± 1	1,4
M9B(69)	92 ± 7	45 ± 1	2,0
M10B(70)	105 ± 8	68 ± 2	1,5
M11B(71)	183 ± 14	58 ± 1	3,1
M12B(72)	85 ± 6	51 ± 1	1,7
M13B(73)	102 ± 8	63 ± 1	1,6
M14B(74)	91 ± 7	50 ± 1	1,8
M15B(75)	87 ± 7	48 ± 1	1,8
M16B(76)	177 ± 13	59 ± 1	3,0

continuação da Tabela 8

M17B(77)	111 ± 8	60 ± 1	1,9
M18B(78)	101 ± 8	59 ± 1	1,7
M19B(79)	63 ± 5	44 ± 1	1,5
M20B(80)	106 ± 8	43 ± 1	2,5
M21B(81)	113 ± 9	56 ± 1	2,0
M22B(82)	76 ± 6	35 ± 1	2,1
M23B(83)	61 ± 5	33 ± 1	1,8
M24B(84)	144 ± 11	42 ± 1	3,4
M25B(85)	100 ± 8	57 ± 1	1,7
M26B(86)	50 ± 4	32 ± 1	1,6
M27B(87)	46 ± 3	40 ± 1	1,1
M28B(88)	137 ± 10	51 ± 1	2,7

P: perfil amplo, **M**: malha, **A**: lado SW da área, **B**: lado NE da área.

() : representação das amostras nos resultados gráficos.

Tabela 9: Atividades específicas de ^{238}U e ^{226}Ra em rocha, e a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$.

AMOSTRA	FAZENDA	^{238}U (Bq.kg ⁻¹)	^{226}Ra (Bq.kg ⁻¹)	$^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$
R1A	F01	16.567 ± 199	14.018 ± 39	1,2
R2A	F01	21.633 ± 260	17.298 ± 48	1,3
R1J	F02	95.980 ± 1.152	83.567 ± 234	1,1
R2J	F02	64.899 ± 779	54.824 ± 154	1,2

R: rocha, **A**: rocha da fazenda F01, **J**: rocha da fazenda F02.

Os valores das atividades específicas do ^{226}Ra foram calculados com base na média das atividades obtidas para os fotopicos de 352 keV do ^{214}Pb e 609 keV do ^{214}Bi . Observa-se que houve praticamente uma coincidência dos valores correspondentes em cada nível de energia (Figura 19). Foi utilizada a Equação 5, com base nas eficiências de contagens estabelecidas com o padrão de ^{152}Eu para estes níveis de energia. Observa-se ainda que as atividades obtidas se encontram dentro de um parâmetro estatístico confiável, com um erro médio de aproximadamente 0,12% (Tabela 10), levando-se em consideração para esta estimativa, a média em cada nível de energia. Desta forma, foi possível usar essa média para o cálculo final das atividades do ^{226}Ra .

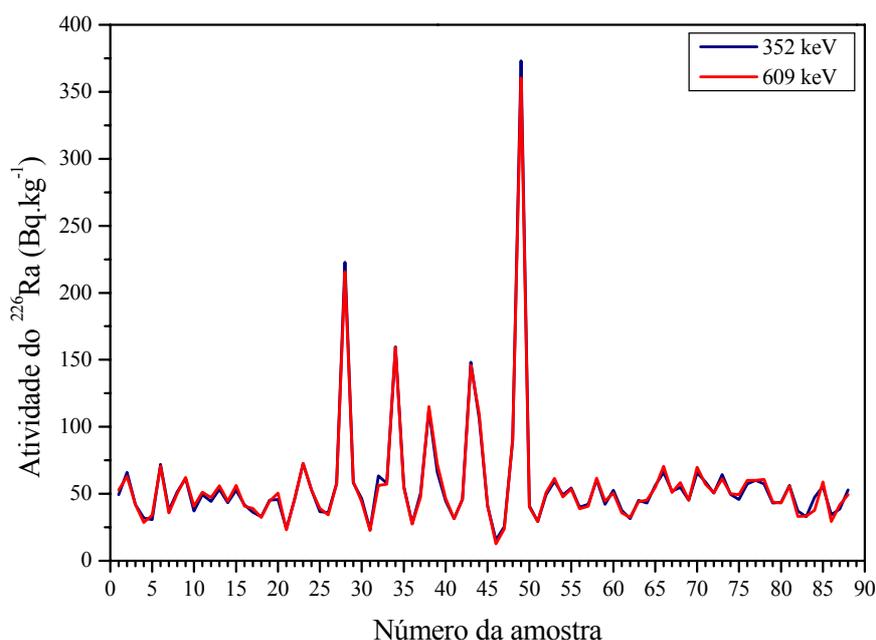


Figura 19: Atividades do ^{226}Ra em solo, determinadas para os fotopicos de 352 keV do ^{214}Pb e 609 keV do ^{214}Bi , com base na curva de eficiência para o ^{152}Eu .

Tabela 10: Parâmetros estatísticos das atividades do ^{226}Ra calculadas com base nos fotopicos de 352 keV do ^{214}Pb e 609 keV do ^{214}Bi .

PARÂMETROS ESTATÍSTICOS	ENERGIAS (keV)	
	352	609
	Atividades (Bq.kg^{-1})	
Faixa de concentração	15,5 - 373,0	12,6 - 360,2
Média aritmética	57,0	56,9
Desvio padrão (atividades médias)	0,07	
Erro médio (%)	0,12	

Para determinar as atividades do ^{238}U foram utilizados como base de cálculo apenas os valores obtidos no fotopico de 63 keV, isto porque a energia de 93 keV, conforme dados da literatura, destacando-se alguns autores como, Kin; Burnett (1983), Amaral (1987), Papachristodoulou et al. (2003) e Karangelos et al. (2004), entre outros, está sujeita a maiores interferências de raios X e ocorre em regiões de alto background Compton, o que também foi constatado experimentalmente neste trabalho (Figura 20).

Como pode ser observado por esta figura, esses cálculos apresentam uma grande margem de erro quando utilizada a energia de 93 keV. Estatisticamente essa energia apresenta um erro médio de 25%, tomando como base de cálculo as médias entre as atividades obtidas para estes dois fotopicos. Para o fotopico de 93 keV, ocorre coincidência de fase, devido as interferências de raios X e fótons de baixa energia, o que foi observado claramente na determinação da curva de eficiência (Figura 18), onde para baixas energias, existe uma probabilidade maior de erro (região crítica) na determinação da eficiência de contagem, o que gera subsequente um erro considerável no cálculo final das atividades.

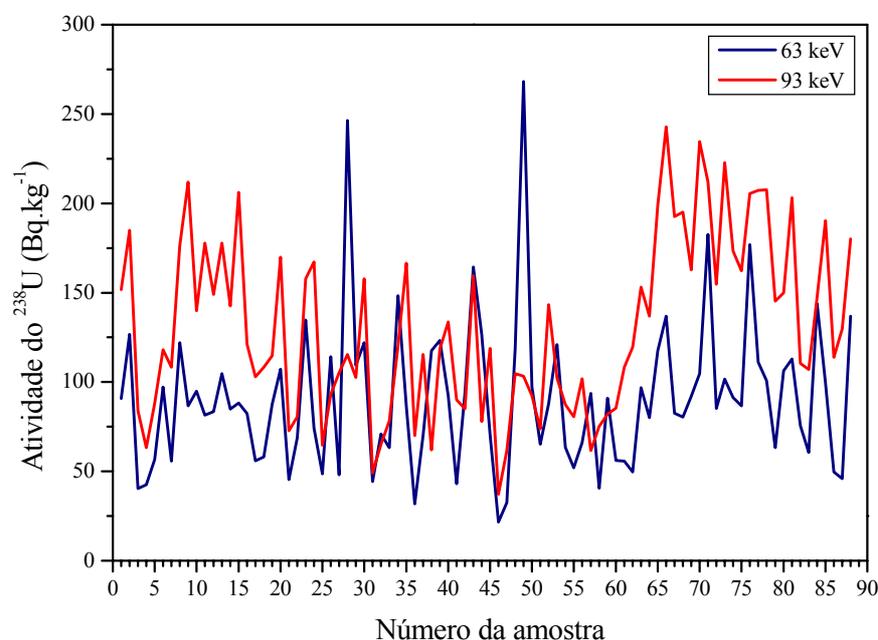


Figura 20: Atividades do ^{238}U em solo, determinadas para os fotopicos de 63 keV e 93 keV do ^{234}Th , com base na curva de eficiência para o ^{152}Eu .

A Tabela 11 apresenta os parâmetros estatísticos definidos com base nas atividades obtidas para os fotopicos de 63 keV e 93 keV, onde o erro médio é superior ao observado na comparação entre os fotopicos dos descendentes do ^{226}Ra .

Tabela 11: Parâmetros estatísticos das atividades do ^{238}U calculadas com base nas energias de 63 keV e 93 keV do ^{234}Th

PARÂMETRO ESTATÍSTICO	ENERGIA (keV)	
	63	93
	Atividades (Bq.kg^{-1})	
Faixa de determinação	21,6 – 268,1	49,1 - 242,7
Média aritmética	91,0	130,5
Desvio padrão médio	27,9	
Erro médio (%)	25,0	

As atividades de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de solo e rocha, apresentam valores que variam de 14 a 95.980 Bq.kg^{-1} . Especificamente para o ^{238}U estes valores variaram de 22 a 268 Bq.kg^{-1} em solo e de 16.567 a 95.980 Bq.kg^{-1} para as amostras de rocha. Enquanto que para o ^{226}Ra no solo, as medidas variaram de 14 a 367 Bq.kg^{-1} e de 14.018 a 83.567 Bq.kg^{-1} em rocha.

Das oitenta e oito (88) amostras de solo analisadas, oitenta e duas (82) apresentaram valores superiores aos valores citados na literatura, médias mundiais, (MALANCA et al., 1993; DIMOVA et al., 2003), para pelo menos um dos radionuclídeos em consideração. Isto perfaz um percentual de aproximadamente 93,2% das amostras de solo com teores superiores às médias mundiais, que, segundo a literatura, variam em torno de 25 Bq.kg^{-1} para urânio natural (DIMOVA et al., 2003) e aproximadamente 26 Bq.kg^{-1} para ^{226}Ra (MALANCA et al., 1993).

Em particular, para as análises da rocha cálcio-silicática anfibolítica, observa-se uma maior concentração desses elementos radioativos devido à formação geológica primária, conforme foi determinado pela difratometria de raios X (item 4.2.1), onde o urânio encontra-se na forma de mineral primário, pertencente à série $\text{U}_{1-3}\text{O}_{2-8}$, uma variabilidade de óxidos de urânio, que cristalizou durante a formação desta rocha (metamórfica).

4.3.3 Distribuição de ^{238}U e ^{226}Ra no perfil amplo do solo da área anômala

A Figura 21, apresenta as atividades específicas (Bq.kg^{-1}) do ^{238}U e ^{226}Ra em uma primeira amostragem de solo ao longo de um perfil amplo que passa pela rocha de radioatividade anômala (cálcio-silicática anfibolítica) na fazenda F01, conforme mapa de amostragem da Figura 11.

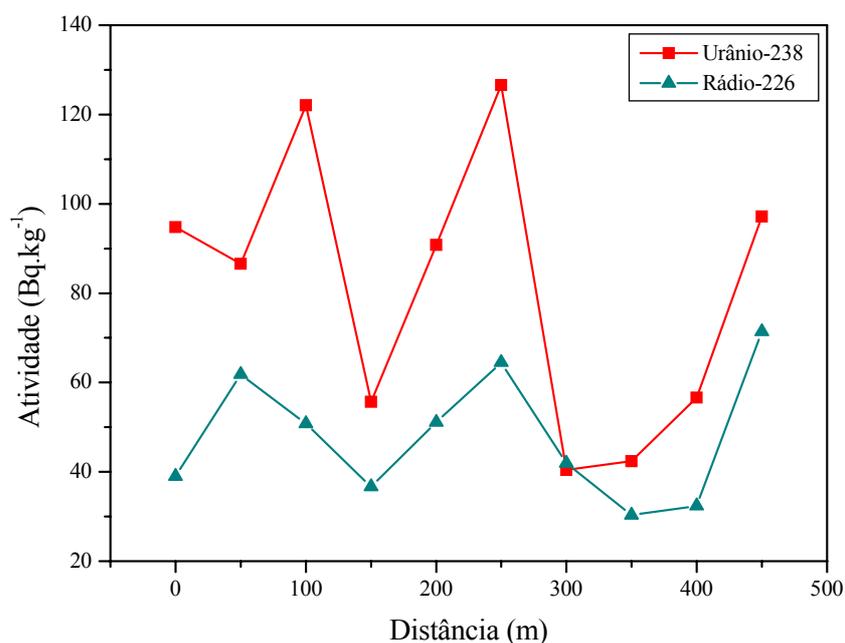


Figura 21: Distribuição de ^{238}U e ^{226}Ra ao longo do perfil amplo do solo da área anômala (Bq.kg^{-1}) em intervalos de 50 m.

Nessa primeira análise observa-se que a distribuição do ^{238}U variou, em termos de atividade, de 40 a 127 Bq.kg^{-1} (média aritmética de 81 Bq.kg^{-1}). Para o ^{226}Ra essa distribuição variou de 30 a 71 Bq.kg^{-1} (média aritmética de 48 Bq.kg^{-1}). Esses valores estão relacionados na Tabela 8, onde para o perfil amplo as amostras são identificadas com os códigos que variam de P1A(1) a P4B(10), perfazendo um total de dez amostras. Para todas elas, os valores das atividades do ^{238}U foram superiores aos do ^{226}Ra .

Nessa primeira amostragem de solo, observa-se uma tendência das atividades do ^{226}Ra , para algumas amostras, se correlacionarem com as atividades do ^{238}U . Para confirmação desta tendência, foram realizadas análises de correlação (coeficiente de correlação linear, r) (SPIEGEL, 1985), entre as atividades destes radionuclídeos (Figura 22).

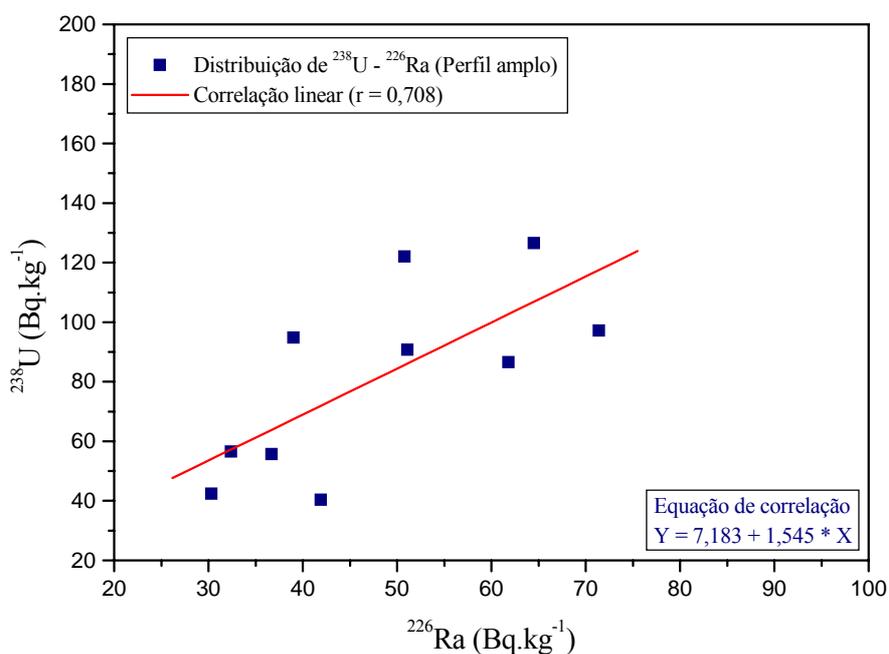


Figura 22: Correlação entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra no perfil amplo do solo.

O coeficiente de correlação linear de aproximadamente $r = 0,708$ para um nível de confiança de 95%, mostra que existe alguma correlação entre as atividades do ^{238}U e do ^{226}Ra no perfil amplo do solo, conforme foi observado, para algumas amostras, especificamente nos intervalos de amostragens correspondentes a: 100 - 150 m, 150 - 250 m, 250 - 300 m e 400 - 450m (Figura 21).

4.3.4 Análise espectrométrica da rocha

A Figura 23 apresenta as concentrações do ^{238}U e ^{226}Ra para as amostras da rocha cálcio-silicática anfibolítica (F01 e F02). Observa-se no gráfico, que para todas as amostras da rocha cálcio-silicática, o ^{238}U apresenta concentrações específicas um pouco superiores ao ^{226}Ra . Isto é muito provavelmente devido a que, embora a radioatividade do rádio seja 3×10^6 vezes superior à do urânio, a razão Ra/U é de aproximadamente 1 átomo de rádio para 3×10^6 átomos de urânio (HOLLEMAN; WIBERG, 1960), ou seja, uma tendência ao equilíbrio radioativo.

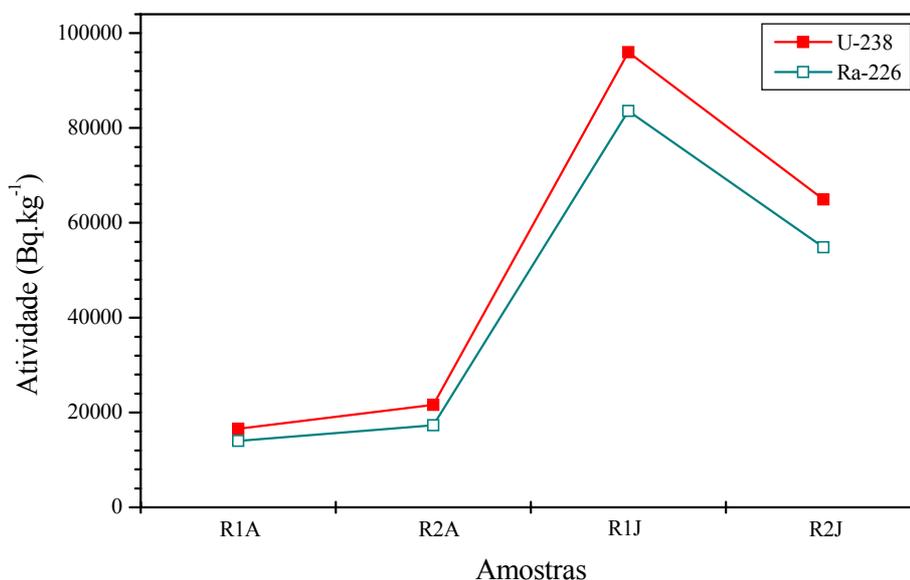


Figura 23: Atividades específicas de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de rocha cálcio-silicática anfibolítica (rocha anômala).

Na Figura 24, é apresentada a correlação linear entre as atividades do ^{238}U e ^{226}Ra para as amostras da rocha cálcio-silicática anfibolítica. O coeficiente de correlação linear de aproximadamente $r = 0,999$ para um nível de confiança de 95%, indica uma correlação significativa entre estes radionuclídeos para todas as amostras. Este fato é possível, uma vez que em rocha, ocorre o equilíbrio radioativo secular, em particular para o urânio e o rádio. Desta forma, a correlação linear confirma este equilíbrio entre os dois radionuclídeos

considerados. Convém observar que as amostras da rocha foram trituradas, a fim de se obter uma maior homogeneização dos minerais presentes, e por isso o equilíbrio entre o ^{226}Ra e descendentes foi perturbado, devido ao escape do ^{222}Rn . Porém conforme observado pela Figura 24, este foi praticamente restabelecido devido ao procedimento adotado, e à padronização para preparação das amostras (itens 3.6.1 e 3.8).

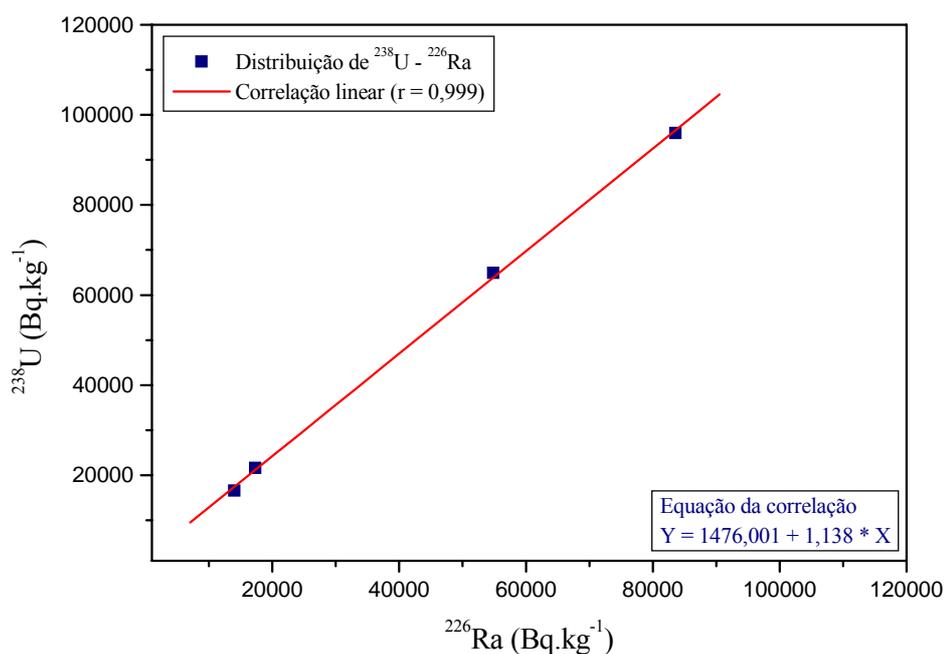


Figura 24: Correlação entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras da rocha cálcio-silicática (rocha anômala).

4.3.5 Análise espectrométrica do solo

A Figura 25 apresenta as atividades específicas do ^{238}U e ^{226}Ra no solo, em torno da rocha anômala. Neste gráfico observa-se que praticamente em todas as amostras de solo as atividades do ^{238}U são superiores às do ^{226}Ra . Isto se deve em parte à sua mobilidade, ou seja, o urânio existente na matriz rochosa está sendo mobilizado para o solo pela influência antropogênica e principalmente natural. A mobilidade do urânio varia com seu grau de oxidação, normalmente encontrado na natureza nas formas $+4$ e $+6$. No solo, o urânio

apresenta-se principalmente como íon uranila, UO_2^{2+} , bem mais móvel, podendo ser adsorvido tanto pela argila como pela matéria orgânica. O rádio por apresentar o estado de oxidação +2, sua mobilidade em solo varia de moderada a baixa, portando menos móvel que o urânio.

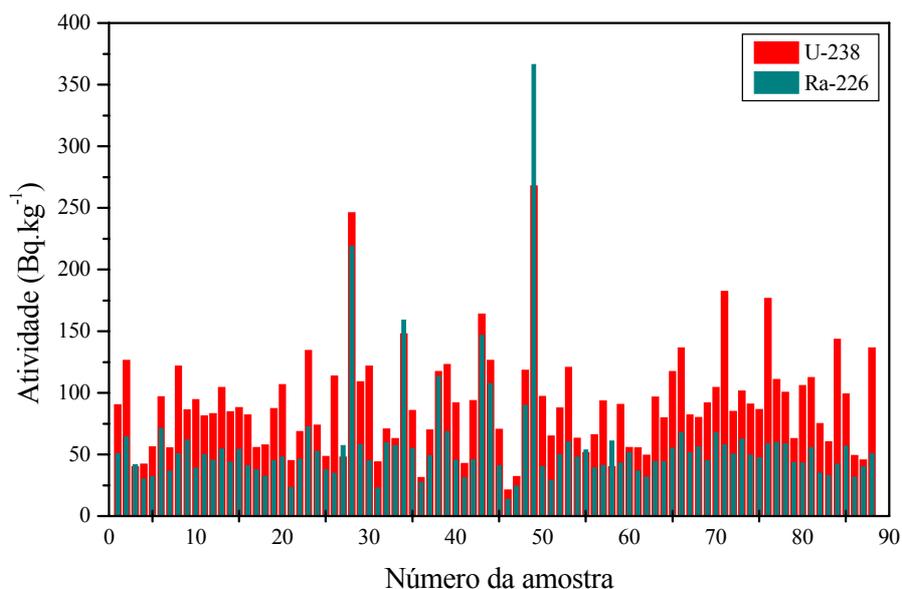


Figura 25: Atividades específicas de ^{238}U e ^{226}Ra nas amostras de solo.

Convém observar que em alguns pontos de amostragens no solo, especificamente as amostras P3A(3); M17A(27); M24A(34); M39A(49); M45A(55); M48A(58) (Tabela 8 e Figura 11), as atividades do rádio são relativamente superiores as do urânio, especialmente para a amostra M39A(49), que apresentou o maior valor da atividade de rádio no solo. Isto perfaz um percentual de aproximadamente 6,8% das amostras de solo. A explicação para esse fenômeno é devida principalmente a mobilidade do urânio, ou seja, para estas amostras parte do urânio existente foi mobilizado, permanecendo o rádio em maiores concentrações, uma vez que este é menos móvel. As condições ambientais também interferem na mobilidade destes radionuclídeos.

A Figura 26 apresenta a correlação linear para as amostras de solo apresentadas na figura anterior. O coeficiente de correlação linear, $r = 0,761$ para um nível de confiança de 95%, indica que estas amostras apresentam algum grau de correlação. Entretanto, uma parte destas, não estão diretamente correlacionadas, isto se deve principalmente devido a discrepância de alguns valores quando comparados com a média aritmética geral.

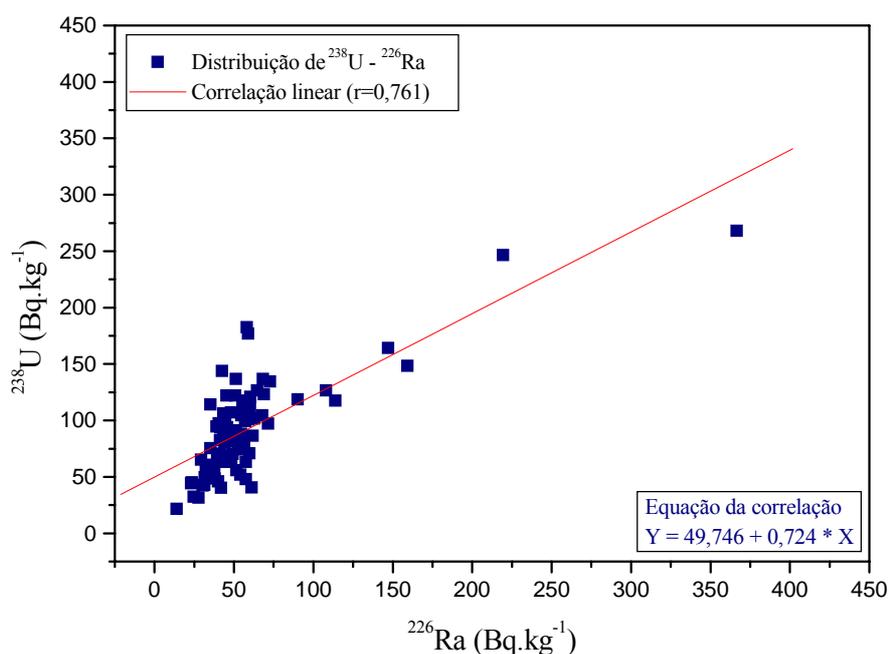


Figura 26: Correlação linear entre as atividades do ^{238}U e ^{226}Ra para as amostras de solo da área estudada.

Para uma melhor compreensão da distribuição do ^{238}U e ^{226}Ra no solo, são apresentadas as Figuras 27 e 28. Estas figuras mostram as correlações lineares para as amostras de solo, as quais foram divididas em duas categorias: amostras próximas a anomalia principal em rocha e amostras distanciadas desta. Esta fragmentação é justificada para uma melhor avaliação da migração destes radionuclídeos na área de estudo, uma vez que o urânio é mais móvel que o rádio.

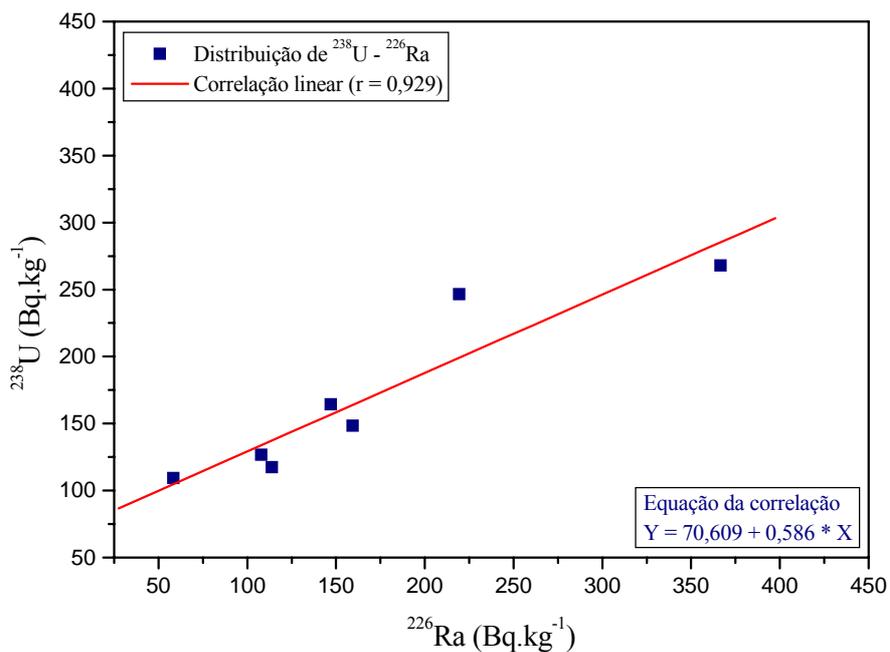


Figura 27: Correlação linear entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra para as amostras de solo próximas a área anômala.

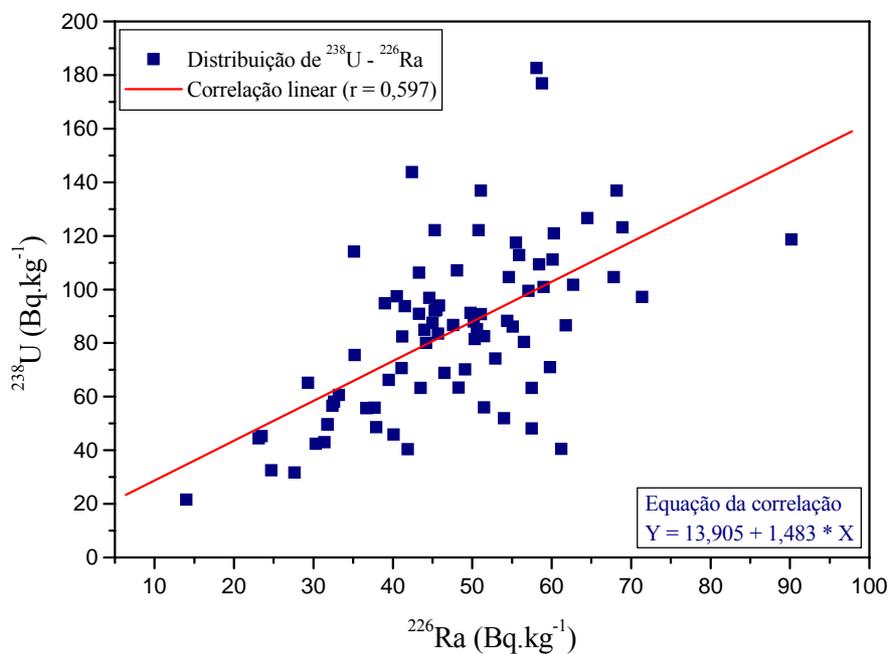


Figura 28: Correlação linear entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra para as amostras de solo distanciadadas da área anômala.

Para a Figura 27, o coeficiente de correlação linear, $r = 0,929$ justifica uma significativa correlação linear para todas estas amostras de solo, ou seja, as concentrações específicas do ^{238}U e ^{226}Ra estão diretamente correlacionadas. Pela análise da Figura 28, pode-se observar a correlação linear para as amostras mais distanciadas da anomalia principal. A determinação do coeficiente de correlação linear de aproximadamente $r = 0,597$ indica que praticamente não existe correlação linear entre as concentrações obtidas para estas amostras.

Contudo, convém observar que as diferenças entre os valores de r observados nas Figuras 27 e 28, caracteriza claramente uma maior migração do ^{238}U na área de estudo, ou seja, um maior valor do coeficiente de correlação linear observado para as amostras da Figura 27 indica que o ^{226}Ra , pouco móvel, concentra-se mais intensamente na região próxima a anomalia principal, enquanto que o ^{238}U , migra seqüencialmente no solo, atingindo distâncias maiores, o que justifica maior discrepância entre as atividades destes radionuclídeos na Figura 28.

4.3.6 Distribuição de frequência para ^{238}U e ^{226}Ra

Os dados experimentais para verificação da distribuição de ^{238}U e ^{226}Ra no solo foram baseados no teste de aderência não paramétrico de Kolmogorov-Smirnov para um nível de confiança de 95%.

A Figura 29 apresenta a distribuição de frequência absoluta para as atividades do ^{238}U no solo. Para o ^{226}Ra , esta distribuição é apresentada na Figura 30. Na distribuição do ^{238}U (Figura 29) observa-se uma pequena assimetria a esquerda. Os testes indicam que a melhor representação para distribuição do ^{238}U na área de estudo é a normal. Para as atividades do ^{226}Ra , observa-se por meio da Figura 30 uma tendência a assimetria, log-normal no solo em torno da área anômala.

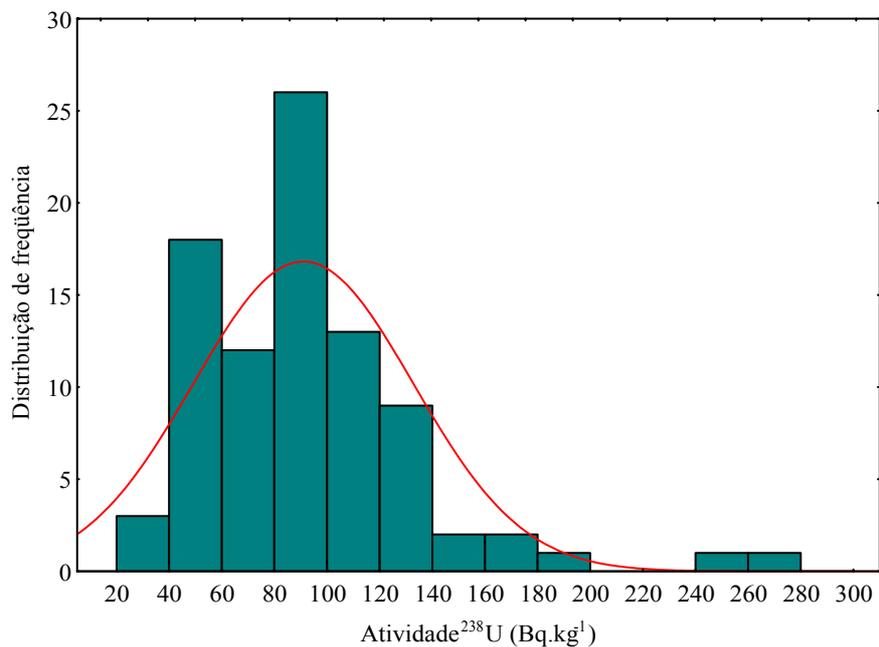


Figura 29: Distribuição de frequência das atividades do ^{238}U segundo o teste de aderência de Kolmogorov-Smirnov.

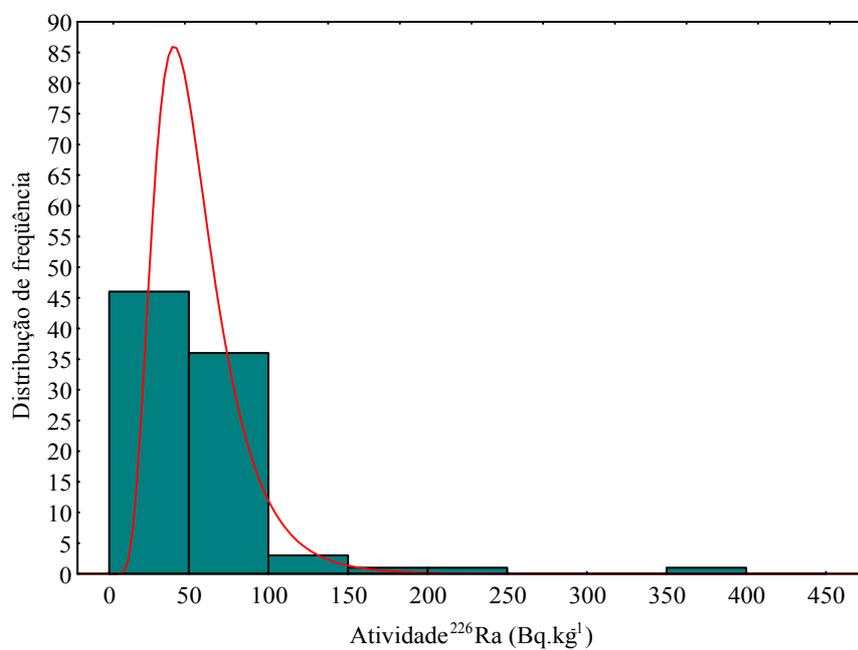


Figura 30: Distribuição de frequência das atividades do ^{226}Ra segundo o teste de aderência de Kolmogorov-Smirnov.

A média aritmética das atividades do ^{238}U nas amostras de solo foi de aproximadamente 91 Bq.kg^{-1} , enquanto que para o ^{226}Ra , a média foi de 57 Bq.kg^{-1} . Esses valores médios, a pesar de não representarem a melhor medida de tendência central para os resultados, foram também considerados, uma vez que os valores de ^{238}U e ^{226}Ra obtidos para solo, foram comparados com as correspondentes atividades médias mundiais. A melhor representação para a média, neste caso, é a mediana, por se tratar de uma medida de tendência central mais estável, principalmente para o urânio, onde os resultados extremos podem afetar sensivelmente o valor da média aritmética e da moda.

A Tabela 12 apresenta os parâmetros estatísticos para o ^{238}U e ^{226}Ra em solo. Observa-se por esta tabela que o ^{238}U apresenta uma mediana de aproximadamente 87 Bq.kg^{-1} , média aritmética de 91 Bq.kg^{-1} e moda de 92 Bq.kg^{-1} , o que permite concluir que a distribuição de frequência (Figura 29), é aproximadamente normal. Para as atividades do ^{226}Ra a moda foi de 39 Bq.kg^{-1} , a mediana de aproximadamente 49 Bq.kg^{-1} e a média aritmética de 57 Bq.kg^{-1} , sendo a medida mais central representada pela mediana, o que permite concluir que a assimetria é acentuada à direita e a melhor representação para a distribuição de frequência é log-normal (Figura 30).

Tabela 12: Parâmetros estatísticos do ^{238}U e ^{226}Ra (Bq.kg^{-1}) nas amostras ambientais de solo da área anômala em estudo.

PARÂMETROS ESTATÍSTICOS	^{238}U	^{226}Ra
Faixa de determinação	22 - 268	14 - 367
Média aritmética	91	57
Média geométrica	83	50
Mediana	87	49
Moda	92	39
Declividade	2	5
Curtose	5	31
Distribuição de frequência	Normal	Log-normal

Para o cálculo da moda, utilizou-se o método de Czuber (ver apêndice, Equação 10), que considera para o cálculo, além da frequência da classe modal, também as frequências das classes adjacentes (TOLEDO; OVALLE, 1983).

As médias aritméticas calculadas para esses radionuclídeos no solo são significativamente altas, com valores de 91 Bq.kg^{-1} para ^{238}U e 57 Bq.kg^{-1} para ^{226}Ra , quando comparadas com os valores normais encontrados na literatura, segundo a qual, como foi visto, a média mundial é de aproximadamente 25 Bq.kg^{-1} para ^{238}U (DIMOVA et al., 2003) e de aproximadamente 26 Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra (MALANCA et al., 1993). Com base nos valores médios obtidos, e as médias mundiais fornecidas pela literatura para solos, observa-se que o ^{238}U apresenta, em média, um fator de concentração radiológico (fc)⁶ de aproximadamente 4. Para o ^{226}Ra o fc médio foi 2, significando que em média, os valores das atividades do ^{238}U calculadas para solo é aproximadamente quatro vezes superior ao valor médio estabelecido, e o ^{226}Ra duas vezes maior que a média mundial.

4.3.7 Relação $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$

As Figuras 31 e 32 apresentam respectivamente as variações das razões, $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$, para as quatro amostras da rocha cálcio-silicática anfibolítica (F01 e F02) e para as oitenta e oito amostras de solo (F01) analisadas. Para as amostras de rocha, observa-se que a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$, em termos de atividade, variou de 1,1 a 1,3 (média 1,2), conforme observado pela Figura 31. Para solo, esta razão foi de 0,7 a 3,4 (média 1,7), Figura 32. Nestas figuras, observa-se uma grande concentração de valores da razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ em torno da média, principalmente para as amostras de rocha (Figura 31), onde observa-se praticamente um equilíbrio radioativo. Também foi observado, que uma pequena fração das amostras de solo, aproximadamente 4,5%, apresentam atividades menores que um, indicando que as atividades do ^{226}Ra no solo são superiores as do ^{238}U .

⁶ Fator de concentração (fc) é a relação entre a concentração de um elemento numa ocorrência e o teor médio desse elemento na crosta continental (clarke).

Esta razão, também permite avaliar que aproximadamente 3,4% das amostras de solo apresentam valores das atividades de ^{238}U e do ^{226}Ra aproximadamente iguais.

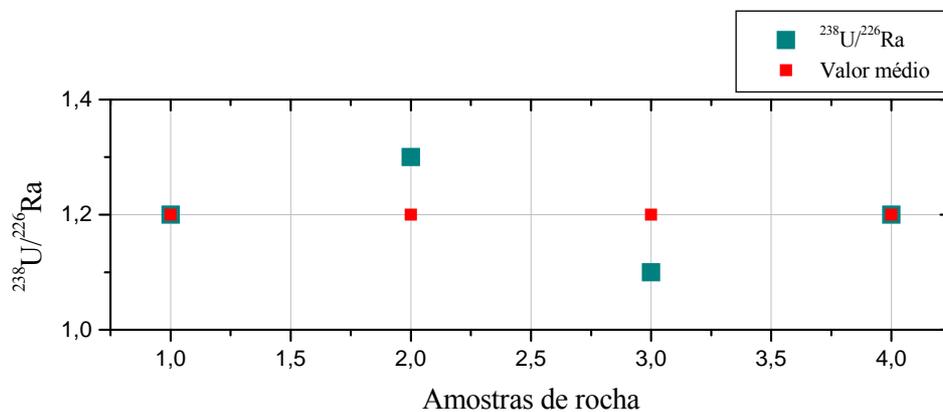


Figura 31: Razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) em rocha

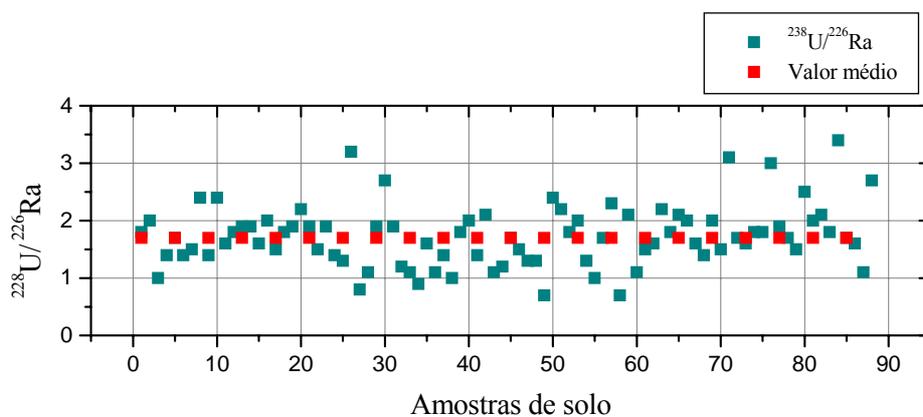


Figura 32: Razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) em solo

Observa-se ainda que em média a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ para solo é superior aquela da rocha, caracterizando que na rocha as atividades do urânio e do rádio estão bem mais correlacionadas do que no solo, ou seja, o rádio, pouco móvel, concentra-se localmente próximo a origem (rocha anômala) enquanto que o ^{238}U , mais móvel, apresenta concentrações superiores ao ^{226}Ra também no solo.

4.3.8 Curvas de isoatividades para o urânio e rádio no solo

As curvas de isoatividades (Figuras 33, 34 e 35) apresentam, respectivamente, a distribuição das atividades do ^{238}U , ^{226}Ra e a razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ no solo, em torno da rocha cálcio-silicática anfíbolítica anômala na fazenda F01. As curvas apresentadas nas Figuras 33 e 34, permitem respectivamente, uma melhor avaliação da mobilidade do ^{238}U e do ^{226}Ra no solo, pela avaliação dos diferentes valores das atividades nos diversos pontos de amostragem. As maiores atividades foram identificadas próximo à anomalia principal (cálcio-silicática anfíbolítica). Estes radionuclídeos existentes na rocha matriz estão seqüencialmente migrando no ambiente, onde essa migração é influenciada em parte pela topografia do terreno e pela rocha anômala que atinge a superfície. Outros fatores como fluxo de águas, pH do solo, etc., podem interferir na distribuição do urânio e do rádio no meio ambiente. Por ser uma região do agreste com chuvas ocasionais e com distribuição irregular, a migração desses elementos ocorre lentamente.

A Figura 35 apresenta as curvas de isoatividades obtidas para a representação da razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ no solo em torno da rocha anômala. Observa-se por esta que, próximo a anomalia em rocha, a razão é aproximadamente igual a um ($^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra} \cong 1$), correlacionando a existência de um equilíbrio radioativo. Para as amostras distanciadas desta anomalia, observa-se que esta razão é superior a um ($^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra} > 1$), para a maioria das amostras, implicando em maiores concentrações do urânio ao longo da área, o que justifica sua maior mobilidade e confirma a relação observada nas Figuras 31 e 32, vistas anteriormente.

Apesar da inclusão dos teores anômalos das atividades de ^{238}U e ^{226}Ra da rocha cálcio-silicática distorcer a real distribuição destes radionuclídeos no solo, são apresentadas as Figuras 36 e 37, em três dimensões, que realçam a alta anomalia pontual da rocha. Em decorrências destas altas atividades, estes valores são apresentados em função do log decimal.

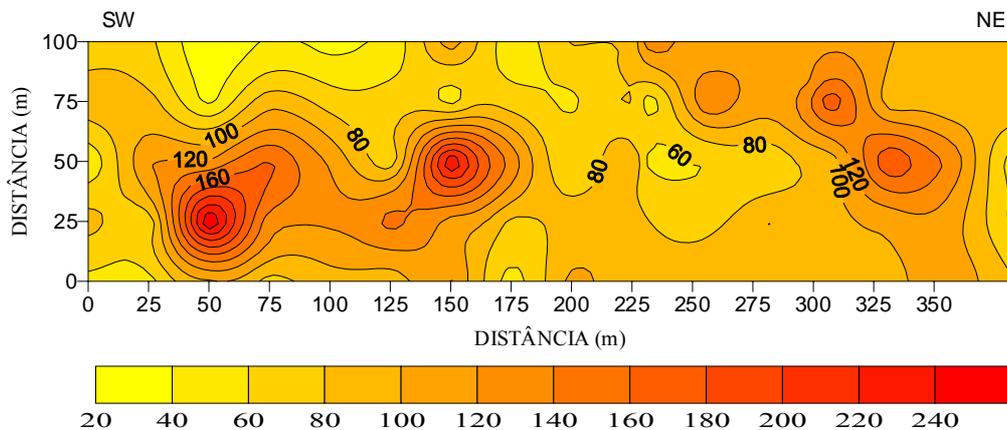


Figura 33: Curvas de isoatividades do ^{238}U (Bq.kg^{-1}) no solo.

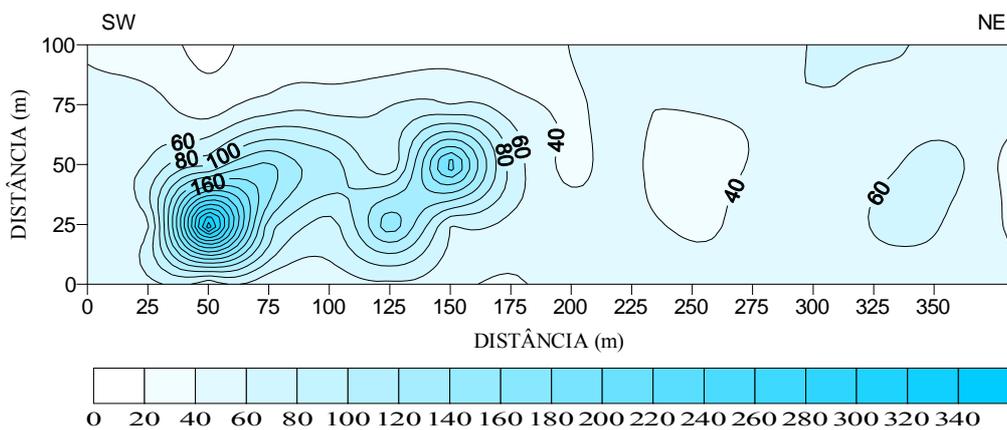


Figura 34: Curvas de isoatividades do ^{226}Ra (Bq.kg^{-1}) no solo.

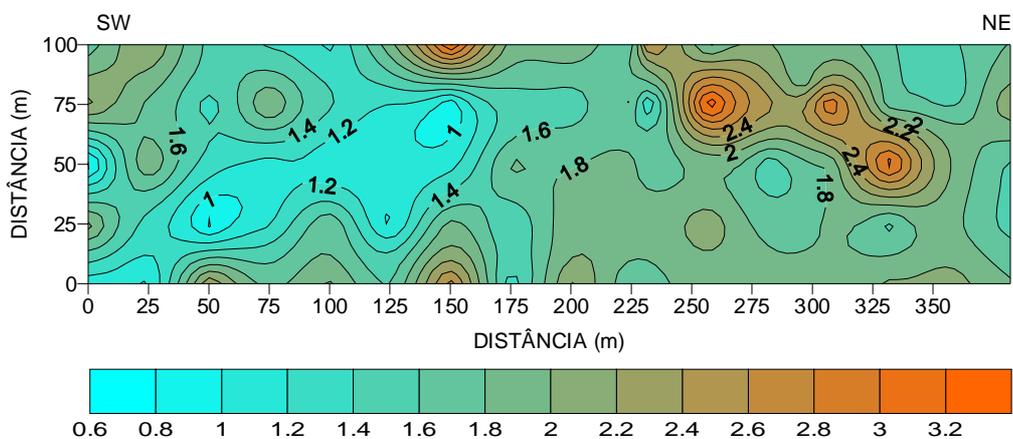


Figura 35: Curvas de isoatividades da razão $^{238}\text{U}/^{226}\text{Ra}$ no solo.

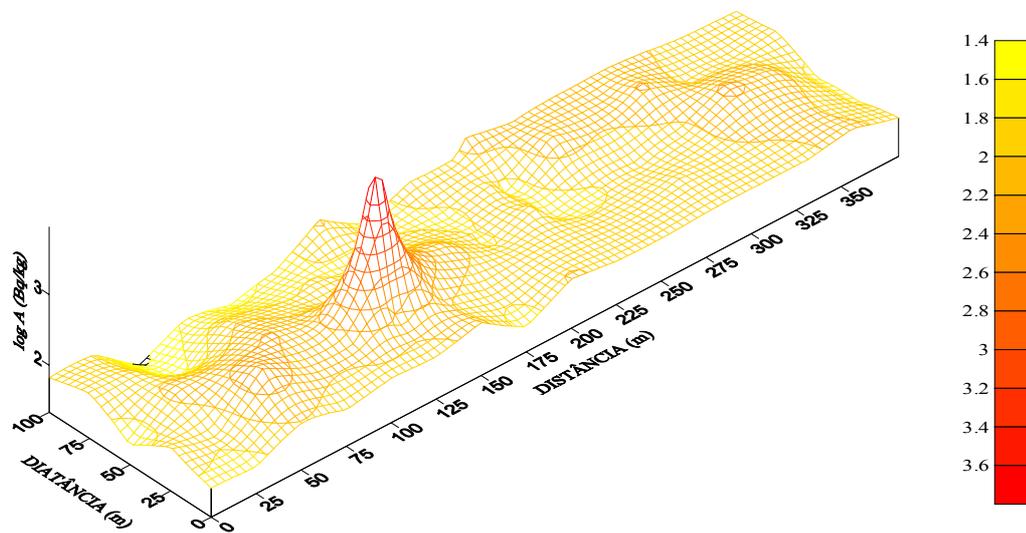


Figura 36: Distribuição em 3D de ^{238}U na área anômala (rocha + solo).

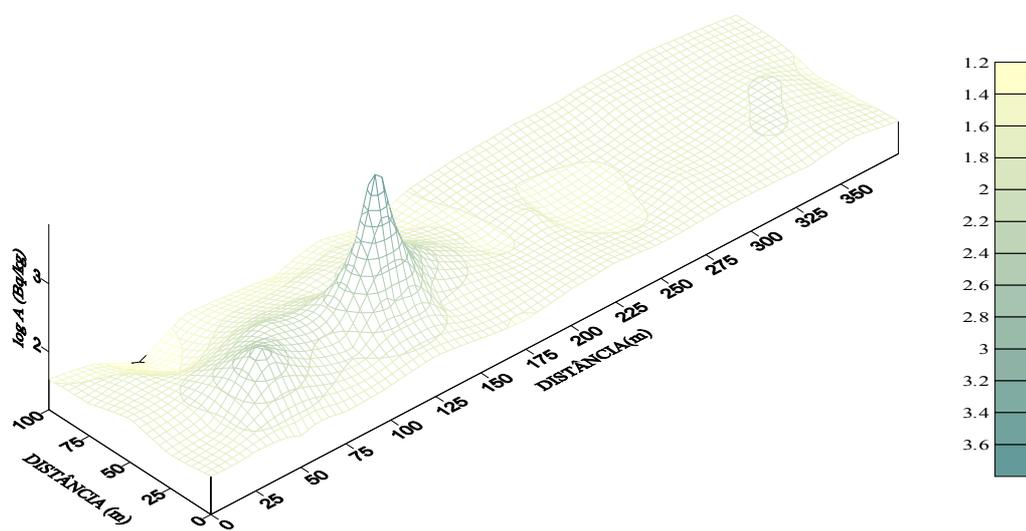


Figura 37: Distribuição em 3D de ^{226}Ra na área anômala (rocha + solo).

É importante observar que nestas figuras, os picos anômalos, correspondentes as medidas das atividades do ^{238}U (Figura 36) e do ^{226}Ra (Figura 37), são aproximadamente iguais, enquanto que para o solo adjacente, os valores das atividades destes radionuclídeos, em termos da função log, são divergentes, fato explicado anteriormente e confirmado pela destas figuras.

4.3.9 Comparação da área de estudo com algumas áreas anômalas no mundo

Observando as Tabelas 13 e 14 pode-se comparar os valores das atividades do ^{238}U e ^{226}Ra em amostras de solo, obtidos de alguns estudos realizados em diferentes localidades no planeta, inclusive com os resultados obtidos neste estudo. Observa-se que, em média, as atividades específicas do ^{238}U na área estudada são superiores aos resultados encontrados em Gadalore, Kalpakkam, Udagamandalam - Índia, e em Tripoli, superando-os em fatores de concentrações radiológicas médios de 2,4; 5,7; 8,7 e 2,1, respectivamente. Para o ^{226}Ra essas concentrações foram superiores às das localidades da República da Irlanda e Rio Grande do Norte - Brasil, com fatores de concentrações radiológicas de 1,5 e 2,0, respectivamente.

Tabela 13: Concentrações específicas do ^{238}U em solo de algumas áreas do planeta.

LOCAL	A ^{238}U (Bq.kg ⁻¹)		REFERÊNCIA
	FAIXA	MÉDIA	
Pernambuco	21,6 - 268,1	91,0	Presente estudo
Ajka – Hungria	33 - 944	291,4	Papp et al. (1997)
China	20 - 520	-----	Kannan, et al. (2002)
Espanha	8 - 310	-----	Kannan, et al. (2002)
Estados Unidos	9 – 1.558	-----	Kannan, et al. (2002)
Gadalore – Índia	16,7 – 62,4	37,7	Selvasekarapandian et al. (2000)
Kalpakkam – Índia	5 – 71	16,0	Kannan, et al. (2002)
Tripoli	8,7 – 12,8	10,5	Shenber (1997)
Udagamandalam – Índia	0 – 87,5	43,2	Selvasekarapandian et al. (1999)
Venezuela	15 - 37	-----	Kannan, et al. (2002)

Tabela 14: Concentrações específicas de ^{226}Ra em solo de algumas áreas do planeta.

LOCAL	A ^{226}Ra (Bq.kg ⁻¹)		REFERÊNCIA
	FAIXA	MÉDIA	
Pernambuco	14,0 – 366,6	57,0	Presente estudo
Ajka – Hungria	20 – 798	267,5	Papp et al. (1997)
República da Irlanda	8 - 220	37,0	McAulay; Moran (1988)
RN – Brasil	10,3 – 137,6	29,0	Malanca et al. (1993)

Em geral, as atividades do ^{238}U são maiores que as do ^{226}Ra tanto para as amostras de rocha quanto para as amostras de solo. Altos níveis significativos de atividades do ^{238}U (22 a 268 Bq.kg⁻¹), com média de 91 Bq.kg⁻¹ e ^{226}Ra (14 a 367), média 57 Bq.kg⁻¹, foram encontrados nas amostras de solo da área anômala. Para as amostras de rocha, esses valores foram bem mais significativos, onde para o ^{238}U essas atividades variaram de 16.567 a 95.980 Bq.kg⁻¹, em média 49.770 Bq.kg⁻¹ e para o ^{226}Ra de 14.018 a 83.567 Bq.kg⁻¹, média de 42.427 Bq.kg⁻¹.

5 CONCLUSÕES

A base deste estudo conduz a uma série de conclusões que definem, pelos métodos propostos, alguns critérios para a distribuição do ^{238}U e ^{226}Ra no solo da área adjacente à ocorrência radioativa anômala de uma rocha.

- A análise microscópica permitiu classificar a rocha anômala como sendo uma cálcio-silicática anfibolítica, um tipo de rocha metamórfica que normalmente apresenta radioatividade muito baixa, ou seja, não apresenta urânio associado, exceção encontrada no presente estudo, uma vez que não existe na literatura estudos que apresentem teores de urânio neste tipo de rocha.
- Por difratometria de raios X foi possível a identificação do mineral de urânio existente na rocha anômala, como sendo pertencente à série da uraninita parcialmente oxidada, parâmetro importante na avaliação da mobilidade do urânio.
- A análise modal em lâmina de rocha da fazenda F01 revelou um teor de 0,39% do mineral de urânio, onde o teor de urânio, com base nesta análise, foi de 9.857 ppm. Esta concentração quando comparada com o “clarke” global, revela uma anomalia radiométrica, com um fator de concentração de aproximadamente 3.651.
- A espectrometria gama permitiu selecionar as melhores energias gama para determinação do ^{238}U e do ^{226}Ra , com base nas eficiências de contagens estabelecidas com uma fonte padrão radioativa de ^{152}Eu .

- As atividades do ^{238}U e ^{226}Ra foram determinadas com boa precisão, utilizando-se para o cálculo do ^{238}U a energia 63 keV do ^{234}Th e para o ^{226}Ra , a média das atividades obtidas para as energias de 352 keV e 609 keV do ^{214}Pb e ^{214}Bi , respectivamente, o que permite avaliar a migração destes radionuclídeos na área de estudo.
- As atividades do ^{238}U e do ^{226}Ra encontradas no solo, são provenientes da rocha anômala, uma vez que na área estudada não existe nenhuma outra fonte fornecedora de urânio.
- A existência de uma maior correlação entre as atividades de ^{238}U e ^{226}Ra na rocha anômala caracteriza uma tendência ao equilíbrio radioativo destes radionuclídeos. Contudo, no solo, as discrepâncias entre as atividades destes radionuclídeos são decorrentes da maior mobilidade do ^{238}U .
- Conclui-se também que, independentemente das anomalias serem pontuais, os teores de urânio são elevados, e por isso o urânio e seus produtos de decaimento estão disseminados principalmente pela ação dos fatores de intemperismo, uma vez que a ação antrópica é insignificante.
- Além disso, um estudo de distribuição de ^{238}U e ^{226}Ra como aqui apresentado, provavelmente poderá servir ainda para delimitação de pequenas áreas onde o uso de atividades agrícolas deve ser evitada.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

AKYIL, S.; ASLANI, M. A. A.; GURBOGA, G. ; AYTAS, S.; ERAL, M. Activity concentration of radium-226 in agricultural soils. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 254, n. 1, p. 9-14, 2002.

ALENCAR, D. M. **Determinação radiométrica de urânio e seus produtos de decaimento presentes em minérios de urânio**. 1982. 15 p. Trabalho de conclusão de curso (XIV Curso de Introdução à Engenharia Nuclear) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1982.

AMARAL, R. S. **Determinação de urânio na fosforita por meio de medidas radiométricas e análise por ativação**. 1987. 109 p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1987.

AMARAL, R. S.; DANTAS, C. C. Um método prático para eliminação de dados na calibração radiométrica. In: CONGRESSO GERAL DE ENERGIA NUCLEAR, 3, 1990, Rio de Janeiro. **Anais**. Rio de Janeiro: Associação Brasileira de Energia Nuclear, 22 a 27 abril de 1990. p. 14.

AMARAL, R. S. **Dose na população da região urano-fosfática Pernambucana, devida à presença de Urânio e ^{226}Ra nos cultivares**. 1994. 143 p. Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, São Paulo, 1994.

ARAFA, W. Specific activity and hazards of granite samples collected from the Eastern Desert of Egypt. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 75, p. 315-327, 2004.

ARGENTIÉRE, R. **Urânio e Tório no Brasil: Introdução à física nuclear aplicada**. São Paulo: LEP, 1954. 555 p.

CALHEIROS, M. E. V. **Projeto Venturosa: Estudos Geológicos e Radiométricos na Folha Venturosa - Área I, Sub-Área E**. 1977. 58 p. Relatório de Conclusão de Curso (Graduação em Geologia) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1977.

CARDOSO, J. J. R. F. Os migmatitos e os aspectos geológicos gerais da área correspondente a Folha Venturosa (PE). In: Congresso Brasileiro de Geologia, XXX. 1978 Recife. **Anais**. Recife: Sociedade Brasileira de Geologia, v. 3, 1978, p. 1232-1235.

CHOUAK, A.; VUISTER, P.; PAIC, G.; CSIKAI, J. Determination of U and Ra in rock samples by gamma-spectrometric method. **Journal of Radioanalytical Chemistry**. v. 45, p. 445-451, 1978.

CONCEIÇÃO, F. T.; BONOTTO, D. M. Radiometric characterization of sedimentary rocks at Corumbataí river basin, São Paulo state, Brazil. In: South American Symposium on Isotope Geology, 4, 2003, Salvador. **Anais**. Salvador: CBPM; IRD, 2003. p. 415-418.

CULBERT, R. R.; LEIGHTON, D. G. Low energy gamma spectrometry in the geochemical exploration for uranium. **Journal of Geochemical Exploration**. v. 14, p. 49-68, 1981.

DANA, J. D. **Manual de Mineralogia**. Tradução: Rui Ribeiro Franco. v. 1. Rio de Janeiro: LTC, 1986. 642 p.

DIMOVA, N.; KINOVA, L.; VELEVA, B.; SLAVCHEV, B. Radiochemical procedures for determination of naturally occurred uranium isotopes in environmental samples. **Geology and Geophysics**. v. 46, p. 241-246, 2003.

DOWDALL, M.; SELNAES, Ø.G.; GWYNN, J. P.; DAVIDS, C. Simultaneous determination of ^{226}Ra and ^{238}U in soil and environmental materials by gamma-spectrometry in the absence of radium progeny equilibrium. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 261, n.3, p. 513-521, 2003.

DUFF, M. C.; AMRHEIN, C.; BERTSCH, P. M.; HUNTER, D. B. The chemistry of uranium in evaporation pond sediment in the San Joaquin Valley, California, USA, using X-ray fluorescence and XANES techniques. **Geochimica et Cosmochimica Acta**. v. 61, n. 1, p. 73-81, 1997.

EGGEBERT-SEELMANN, W.; PFENNIG, G.; MÜNZEL, H. **Kuklidkarte**: Chart of the nuclides. 4 ed. Auflage: Institut für Radiochemie, 1974. 28 p.

EISENBUD, M.; GESELL, T. **Environmental Radioactivity**: from natural, industrial, and military sources. 4 ed. New York: Academic Press, 1997. 656 p.

ENVIRONMENT-MONITORING: **Detector de HPGe na blindagem**. 2004. Altura: 326 pixels. Largura: 323 pixels. 14 kb. 1 fotografia, color. Disponível em: <http://www.environment-monitoring.web.cern.ch/environment-monitoring/te_en_laboratory.html>. Acesso em 09 ago. 2004, 10:14:26.

ERDTMANN G.; SOYKA W. **The gamma of the radionuclides**: tables for applied gamma Ray spectrometry. v. 7. New York: Verlag Chemie, 1979. 862 p.

FAVA, N; TORRES, M. G.; LENHARO, S. L. R.; MARTINS, E. S.; BOAVENTURA, G.R.; GASPAR, J. C. Caracterização e Quantificação de Argilo - Minerais por Difractometria de Raios -X e Termogravimetria. In: Congresso Brasileiro de Cimento, 5, 1999. **Anais**. 8 a 12 de nov. 1999. 15 p.

FISHER, D.R.; JACKSON, P. O.; BRODACZYNSKI, G. G.; SCHERPELZ, R. I. Levels of ^{234}U , ^{238}U and ^{230}Th in excreta of uranium mill crushermen. **Health Physics**. v. 45, n.3, p. 617-629, 1983.

FONTES, L. C. S. **Projeto Venturosa**: Geologia e Radiometria da Quadrícula Sudoeste da Folha Venturosa PE, Sub-Área SO. 1976. 96 p. Relatório de Conclusão de Curso (Graduação em Geologia) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1976.

FORTUNECITY: **Perfis do solo**. 2004. 1 fotografia, color. Disponível em: <<http://www.campus.fortunecity.com/yale/757/solos.htm>>. Acesso em: 21 jun. 2004, 19:25:16.

GHIASSI-NEJAD, M.; BEITOLLAHI, M. M.; FALLAHIAN, N.; AMIDI, J.; RAMEZANI, H. Concentrations of natural radionuclides in imported mineral substances. **Environment International**. v. 26, p. 557-560, 2001.

GINSBURG, I. I. **Grundlagen und verfahren geochemischer sucharbeiten auf lagerstätten der buntmetalle und seltenen metalle**. Berlin: Akademie, 1963. 339 p.

GOMES, F. V. M. **Aplicação dos isótopos do urânio como traçadores de água subterrânea do Bambuí - Bahia**. 1978. 73 p. Dissertação (Mestrado em Geofísica), Departamento de Geofísica, Universidade Federal da Bahia, Bahia, 1978.

GONSALVES, A. D. Elementos químicos componentes dos minerais radioativos e das terras raras. In: GONSALVES, A. D. **Átomo e força atômica. Recursos do Brasil. Energia Nuclear. Minerais radioativos e compostos das terras raras**. Rio de Janeiro: Fundo de Cultura, 1959. p. 141-301.

GONZÁLEZ-CHORNET; GONZÁLEZ-LABAJO, J. Natural radioactivity in beach sands from Doñana national park and Mazagón (Spain). **Radiation Protection Dosimetry**. p. 1-4, 2004.

HICKOX, W. H. Uranium: Public health goals for chemicals in drinking water. **Agency Secretary: California Environmental Protection Agency**. 30 p, aug. 2001.

HRABOVSKYY, V.; DZENDZELYUK, O.; KATERYNCHUK, I.; FURGALA, Y. Monitoring of radionuclides contamination of soils in Shatsk National Natural Park (Volyn Region, Ukraine) during 1994-2001. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 72, p. 25-33, 2004.

HOLLEMAN, A. F.; WIBERG, E. **Lehrbuch der anorganischen chemie**. Berlin: Walter de Gruyter, 1960. 703 p.

KANNAN, V.; RAJAN, M. P.; IYENGAR, M. A. R.; RAMESH, R. Distribution of natural and anthropogenic radionuclides in soil and beach sand samples of Kalpakkam (India) using hyper pure germanium (HPGe) gamma ray spectrometry. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 57, p. 109-119, 2002.

KARANGELOS, D. J.; ANAGNOSTAKIS, M. J.; HINIS, E. P.; SIMOPOULOS, S. E.; ZUNIC, Z. S. Determination of depleted uranium in environmental samples by gamma-spectroscopic techniques. **Journal Environmental Radioactivity**. v. 76, p. 295-310, 2004.

KIMBLE, G. H. T.; SINCLAIR, M. H. The occurrence of uranium. **Nucleonics**. p. 48-51, April, 1950.

KIN, K. H.; BURNETT, W. C. **γ -Ray Spectrometric Determination of Uranium-Series Nuclides in Marine Phosphorites**. Tallahassee, Department of Oceanography, Florida, 1796-1800, 1983.

KRAUSKOPF, B. K. **Introduction to Geochemistry**. Tokyo - Sydney: McGraw-Hill, 1979. 617 p.

LAURIA, D. C.; MARTINS, N. S. F.; ZENARO, R. **Monitoração Ambiental**. Rio de Janeiro: IRD – Instituto de Radioproteção e Dosimetria, out. 2003. 87 p.

LEE, C.; LEE, K. A study on the radiometric method for the determination of uranium and thorium in ores. **Journal of the Korcan Nuclear Society**. v. 12, n.2, p. 106-110, 1980.

LEVINSON, A. A.; BLAND, C. J.; DEAN, J. R. Uranium series disequilibrium in young surficial uranium deposits in southern British Columbia. **Can. J. Earth Sci.** v. 21, p. 559-566, 1984.

LINS, A. J. R. **Projeto Venturosa**: Geologia e Radiometria da Quadrícula Sudoeste da Folha Venturosa PE, Sub-Área SE. 1976. 74 p. Relatório de Conclusão de Curso (Graduação em Geologia) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1976.

LITAOR, M. I. Uranium isotopes distribution in soils at the rocky flats plant, Colorado. **J. Environ. Qual.** v. 24, p. 314-323, 1995.

LÓPEZ, R. GARCIA-TALAVERA, M.; PARDO, R.; DEBAN, L.; NALDA, J. C. Natural radiation doses to the population in a granitic region in Spain. **Radiation Protection Dosimetry.** v. 111, n. 1, p. 83-88, 2004.

MAGALHÃES, C. A. P. **Projeto Venturosa**: Estudos Geológicos e Radiométricos na Folha Venturosa - Área I, Sub-Área F. 1977. 49 p. Relatório de Conclusão de Curso (Graduação em Geologia) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1977.

MALANCA, A.; PESSINA, V.; DALLARA, G. Assesment of the natural radioactivity in the Brazilian State of Rio Grande do Norte. **Health Physics.** v. 65, n. 3, p. 298-302, 1993.

MALCZEWSKI, D.; TEPER, L.; DORDA, J. Assessment of natural and anthropogenic radioactivity levels in rocks and soils in the environs of Swieradow Zdroj in Sudetes, Poland, by in situ gamma-ray spectrometry. **Journal of Environmental Radioactivity.** v. 73, p. 233-245, 2004.

MASON, B. **Princípios de Geoquímica**. Tradução: Franco R. R. São Paulo: Polígono, 1971. 403 p.

MCAULAY, I. R.; MORAN, D. Natural radioactivity in soil in the republic of Ireland. **Radiation Protection Dosimeter.** v 24, n. ¼, p. 47-49, 1988.

MCKEE, B. A.; DEMASTER, D. J.; NITTROUER, C. A. Uranium geochemistry on the Amazon shelf: Evidence for uranium release from bottom sediments. **Geochimica et Cosmochimica Acta.** v. 51, p. 2779-2786, 1987.

MELO, M. C. **Estudo das características operacionais de sistemas de espectrometria gama**. 1985. 61 p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1985.

MIAH, F. K.; ROY, S.; TOUHIDUZZAMAN, M.; ALAM, B. Distribution of radionuclides in soil samples in and around Dhaka city. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 49, n. 1-2, p. 133-137, 1998.

MURAWSKI, H. **Geologisches wörterbuch**. Stuttgart – Deutschland: Ferdinand Enke, 1972. 260 p.

MYRICK, T. E.; BERVEN, B. A.; HAYWOOD, F. F. Determination of concentrations of selected radionuclides in surface soil in the U.S. **Health Physics**. v. 45, n. 3, p. 631-642, 1983.

PAIĆ, G.; REGGOUG, A.; PAIĆ A.; CHOUAK, A. Absolute Measurement of the Ra/U Ratio in Uranium Ores Using a Hyperpure Germanium Detector. **Int. J. Appl. Radiat. Isot.**, v. 33, p. 1389-1392, 1982.

PAPACHRISTODOULOU, C. A.; ASSIMAKOPOULOS, P. A.; PATRONIS, N. E.; IOANNIDES, K. G. Use of HPGe γ -ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 64, p. 195-203, 2003.

PAPP, Z.; DEZSO, Z.; DARÓCZY, S. Measurement of the radioactivity of ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{137}Cs e ^{40}K in soil using direct Ge(Li) γ -ray spectrometry. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 222, n. 1-2, p.171-176, 1997.

PETRASCHECK, W. E. **Lagerstättenlehre**. Viena: Springer, 1961. 374 p.

PETRASCHECK, W. E.; POHL, W. **Lagerstättenlehre**. 3 ed. Stuttgart-Deutschland: E. Schweizerbart'sche, 1982. 341 p.

RAMDOHR, P.; STRUNZ, H. **Lehrbuch der mineralogie**. Struttgart – Germany: Ferdinand Enke, 1967. 820 p.

RANKAMA, K.; SAHAMA, T. G. **Geochemistry**. Chicago: The University of Chicago Press, 1950. 911 p.

RÓDENAS, J.; PASCUAL, A.; ZARZA, I.; SERRADELL, V.; ORTIZ, J.; BALLESTEROS, L. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. **Nuclear Instruments and Methods in Physics Research**. v. 496, p. 390-399, 2003.

ROSE, A. W.; HAWKES, H. E.; WEBB, J.S. **Geochemistry in mineral exploration**. 2 ed. London - New York: Academic Press, 1979. 657 p.

ROTHER, K. **Radiometrische Bestimmungen an Mineralien und Gesteinen (Grundlagen, Messverfahren mit Zählrohr, Eichung, Eichung und Anwendung)**. Berlin: Akademie Verlag, 1959. 159 p.

ROUBAULT, M. **Détermination des minéraux des roches au microscope polarisant**. 3 ed. Paris: Lamarre - Poinat, 1982. 382 p.

SANSONE, U.; STELLATO, L.; JIA, G.; ROSAMILIA, S.; GAUDINO, S.; BARBIZZI, S.; BELLI, M. Levels of depleted uranium in Kosovo soils. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 97, n. 4, p. 317-320, 2001.

SANTOS, R. N.; MARQUES, L. S. $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ and $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ activity ratios of Cameroon volcanic line: investigation of secular radioactive disequilibrium in the ^{238}U and ^{232}Th decay series. In: South American Symposium on Isotope Geology, 4., 2003, Salvador. **Anais**. Salvador: CBPM; IRD, 2003. p. 675-678.

SAVANNAH RIVER SITE. **Environmental dose reconstruction project**. 1996. Disponível em: <<http://www.cdc.gov/nceh/radiation/savannah/factsheets/fact2.pdf>>. Acesso em: 17 out. 2004, 14:35:40.

SCHEFFER, F.; SCHACHTSCHABEL, P. **Lehrbuch der Bodenkunde**. Stuttgart – Germany: Ferdinand Enke, 1966. 473p.

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

SELVASEKARAPANDIAN, S.; MANIKANDAN, N. M.; SIVAKUMAR, R.; BALASUBRAMANIAN, S.; VENKATESAN, T.; MEENAKSHISUNDARAM, V.; REGUNATH, V. M.; GAJENDRAN, V. Gamma radiation dose from radionuclides in soil samples of Udagamandalam (Ooty) India. **Radiation Protection Dosimetry**. v. 82, n. 3, p. 225-228, 1999.

SELVASEKARAPANDIAN, S.; SIVAKUMAR, R.; MANIKANDAN, N. M.; MEENAKSHISUNDARAM, V.; RAGHUNATH, V. M.; GAJENDRAN, V. Natural radionuclide distribution in soils of Gudalore, India. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 52, p. 299-306, 2000.

SHENBER, M. A. Measurement of natural radioactivity levels in soil in Tripoli. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 48, p. 147-148, 1997.

SHEPPARD, S. C.; SHEPPARD, M. I.; GALLERAND, M. O.; SANIPELLI, B. Derivation of ecotoxicity thresholds for uranium. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 79, p. 55-83, 2005.

SILVA, C. M.; AMARAL, R. S.; AMARAL, A.; SANTOS JR, J. A.; SANTOS, D. C.; LIMA, L. E. Ra-226 em forragem e água de bovinos leiteiros da região agreste de Pernambuco. **Revista Brasileira de Pesquisa e Desenvolvimento**. v. 6, n. 2, p.72-81, 2004.

SILVA, P. S. C.; MAZZILLI, B. P. U and Th series nuclides in Cubatão River sediments. In: International Conference on Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences, 8, 2005, Rio de Janeiro. **Anais**. Rio de Janeiro: CENA/USP, 2005. p. 114.

SMITH, J. R. **Analysis of National Uranium Resources**; Evaluation Reference Materials Form New Brunswick Laboratory. Washinton: Department of Energy, 1981.

SPIEGEL, M. R. **Estatística**. Tradução, revisão e adaptação: Carlos Augusto Crusius. 2 ed. São Paulo: McGraw-Hill, 1985. 454 p.

SUJO, L. C.; CABRERA, M. E. M.; VILLALBA, L.; VILLALOBOS, M. R.; MOYE, E. T.; LEÓN, M. G.; GARCIA-TENORIO, R.; GARCÍA, F. M.; PERAZA, E. F. H.; AROCHE, D. S. Uranium-238 e thorium-232 series concentrations in soil, radon-222 indoor and drinking water concentrations and dose assessment in the city of Aldama, Chihuahua, Mexico. **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 77, p. 205-219, 2004.

TAUHATA, L; SALATI, I. P. A ; PRINZIO, R. D. ; PRINZIO, A. R. D. **Radioproteção e Dosimetria**: Fundamentos. 5 ed. Rio de Janeiro: IRD/CNEN, ago. 2003. 242 p.

TOLEDO, G. L.; OVALLE, I. I. **Estatística Básica**. 2 ed. São Paulo: Atlas, 1983. 459 p.

TOLEDO, M. C. M.; OLIVEIRA, S. M. B. O.; MELFI, A. J. Intemperismo e formação do solo. In: TEIXEIRA, W.; TOLEDO, M. C. M.; FAIRCHILD, T. R.; TAIOLI, F. (Org.). **Decifrando a Terra**: Oficina de textos. São Paulo: USP, 2000. cap. 8, p. 139-166.

TUREKIAN, K. K.; WEDEPOHL, K. H. Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. **Geol. Soc. Am. Bul.** v. 72, p. 175-192, 1961.

TZORTZIS, M.; TSERTOS, H.; CHRISTOFIDES, S.; CHRISTODOULIDES, G. Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks. **Radiation Measurements**. v. 37, p. 221-229, 2003.

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO: **Difratometria de Raios X**. Apêndice VIII. 2004. Disponível em: <<http://www.teses.usp.br/teses/disponiveis/59/59138/tde-01022002-114630/publico/15-Apendice.pdf>>. Acesso em: 01 mar. 2004, 19:45:40.

WEDEPOHL, K.H. **Handbook of Geochemistry**. v. II/5. Berlin - New York: Springer, 1978. Paginação irregular.

VIEIRA, L. S. **Manual da Ciência do Solo**: com ênfase aos solos tropicais. 2 ed. São Paulo: Ceres, 1988. 464 p.

ZAMAN, M. B.; CHITUMB, K. Determination of Ra to U ratio in ore samples by high resolution gamma spectrometric. **National Council for Scientific Research**, Chelston, Lusaka, Zambia. p. 767-769, 1983.

GLOSSÁRIO

ALUVIÃO

Depósitos de materiais detríticos ou clásticos, de qualquer natureza, carregados por água. Podem ser fluviais, lacustres, lagunares e marinhos.

ARGILA

Material finamente dividido, consolidado ou não, constituído essencialmente de argilominerais, podendo conter outros tipos de minerais ou matéria orgânica, desenvolvendo plasticidade quando pulverizada e umedecida.

ARGILOMINERAIS

Compostos basicamente de silicato de alumínio hidratado, com estrutura em amadas e dimensões menores que 0,02 mm, podendo conter outros elementos como Mg, Fe, Ca, Na, K, Li entre outros.

DIFERENCIAÇÃO MAGMÁTICA

É a formação de rochas à medida que o magma vai se movimentando e se resfriando.

DIQUE

Massa rochosa de forma tabular discordante ou concordante com a estratificação ou com a xistosidade, geralmente constituída de rochas ígneas (magmáticas), preenchendo uma fenda aberta em outra rocha.

HORIZONTES DO SOLO

Camadas de diferentes constituição mineral ou orgânica, aproximadamente paralelas à superfície do terreno.

LIMITE DE DETECÇÃO (LD)

O limite de detecção é a menor quantidade de um componente que pode ser determinada, levando-se em consideração o “background Compton” ou experimento branco, ou seja a radiação de fundo (AMARAL, 1994).

MINERAL

Composto inorgânico natural com propriedades físicas, químicas e cristalinas definidas.

MINERAL PRIMÁRIO

Mineral remanescente de rochas magmáticas ou metamórficas, que permanece no perfil do solo, principalmente no horizonte C, por ser resistente ao intemperismo.

MINERAL SECUNDÁRIO

Mineral resultante da decomposição parcial ou total de um outro mineral.

PERFIL DO SOLO

Seção vertical do solo, através de todos os seus horizontes.

ROCHA

Qualquer agregado ou massa de matéria mineral formada naturalmente, coerente ou não, constituindo uma parte essencial e mensurável da crosta terrestre.

ROCHA MAGMÁTICA OU ÍGNEA

É a rocha produzida pelo resfriamento (solidificação) do magma. Esta rocha por ser derivada do magma, recebe também a denominação de rocha magmática.

ROCHA MATRIZ

Rocha a partir da qual se forma o material de origem do solo. Esta rocha é denominada também de rocha mãe.

ROCHA METAMÓRFICA

Rocha que se forma por recristalização parcial ou total de uma rocha pré-existente, formando-se novos minerais e novas texturas, podendo ou não ocorrer fusão da rocha original, em resposta a mudanças pronunciadas de temperatura, pressão e/ou ambientes químicos em profundidade.

ROCHA PLUTÔNICA

Rocha ígnea ou magmática que se consolida nas partes profundas da litosfera e seus constituintes normalmente são equigranulares. Caracteriza-se por apresentar os cristais bem desenvolvidos.

ROCHA SEDIMENTAR

Rocha formada pela deposição de sedimentos transportados pela água, pelo ar ou por geleiras, entre outros.

SAPROPEL

Também chamado de lama pútrida, tem sua formação devida à acumulação de restos orgânicos no fundo de bacias hidrográficas, principalmente na plataforma continental, mas também na beira de lagos, lagoas, e estuários.

SEDIMENTO

Todo tipo de depósito, mineral ou orgânico, que se originou do transporte efetuado pela água, ar ou gelo.

SOLO

Material mineral e orgânico inconsolidado na superfície da terra, que serve como meio natural para o crescimento e desenvolvimento de plantas terrestres.

SUBSTITUIÇÃO ISOMÓRFICA (DIADOQUIA)

Substituição de um determinado íon da estrutura de um cristal, por outro de tamanho similar, mas não necessariamente de mesma valência, mantendo-se o mesmo arranjo com variação ou não nas dimensões da cela unitária do cristal.

APÊNDICE

A. Desvio Padrão

O desvio padrão (S) constitui uma medida da precisão de um determinado conjunto de resultados, sendo calculado pelas equações 9a e 9b.

Para o número de dados amostrais, n, menor que 30, usa-se a Equação 10a.

$$S = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n - 1}} \quad (9a)$$

Quando n for igual ou maior que 30 dados amostrais, o cálculo obedece a Equação 9b.

$$S = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}{n}} \quad (9b)$$

B. Moda (Método de Czuber)

A moda \hat{X} é uma medida de tendência central. Sua determinação pelo método de Czuber leva em consideração as frequências das classes adjacentes e também a frequência de classe modal, calculada pela Equação 10.

$$\hat{X} = L_i + C \times \frac{\Delta_1}{\Delta_2 + \Delta_1} \quad (10)$$

onde L_i é o limite inferior da classe modal, C é a amplitude do intervalo de classe, Δ_1 é a diferença entre a frequência da classe modal e a frequência da classe anterior, Δ_2 é a diferença entre a frequência da classe modal e a frequência da classe posterior.

C. Amplitude do Intervalo de Classe

A amplitude do intervalo de classe, C , é definida pela relação entre a amplitude total A_t e o número de classes, k (Equação 11), definido pela regra de Strauch (Equação 12).

$$C = \frac{A_t}{k} \quad (11)$$

D. Número de Classes (Regra de Strauch)

O número de classes segundo a regra de Strauch, para o cálculo de uma moda, é apresentado pela Equação 12), com base no número da população n .

$$k = \frac{\log n}{\log 2} + 1 \quad (12)$$

E. Peso Específico

Corresponde a massa do material por unidade de volume, ou seja, é a densidade do material.

$$d = \frac{m}{v} \quad (13)$$