



UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS
DEPARTAMENTO DE ENERGIA NUCLEAR
COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR
CENTRO REGIONAL DE CIÊNCIAS NUCLEARES DO NORDESTE
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM TECNOLOGIAS ENERGÉTICAS E
NUCLEARES

KENNEDY FRANCYS RODRIGUES DAMASCENA

**CARACTERIZAÇÃO RADIOMÉTRICA E MINERALÓGICA DE ÁREAS COM
POTENCIAL RADIOATIVO NOS ESTADOS DA PARAÍBA E DO RIO GRANDE DO
NORTE**

Recife

2019

KENNEDY FRANCYS RODRIGUES DAMASCENA

**CARACTERIZAÇÃO RADIOMÉTRICA E MINERALÓGICA DE ÁREAS COM
POTENCIAL RADIOATIVO NOS ESTADOS DA PARAÍBA E DO RIO GRANDE DO
NORTE**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito para obtenção do título de Doutor em Ciências.

Área de Concentração: Dosimetria e Instrumentação Nuclear.

Orientador: Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior

Recife

2019

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

D155c Damascena, Kennedy Francys Rodrigues.
Caracterização radiométrica e mineralógica de áreas com potencial radioativo nos estados da Paraíba e do Rio Grande do Norte. / Kennedy Francys Rodrigues Damascena. - Recife, 2019.
96 f. : il., figs., gráfs., tabs.

Orientador: Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior.

Tese (doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco. CTG. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, 2019.
Inclui referências.

1. Engenharia nuclear. 2. Ambiente. 3. Dosimetria.
4. Espectrometria. 5. Radioatividade. 6. Radioecologia. I. Santos Júnior, José Araújo dos, orientador. II. Título.

621.48 CDD (22. ed.)

UFPE/BDEN-2019/18

KENNEDY FRANCYS RODRIGUES DAMASCENA

**CARACTERIZAÇÃO RADIOMÉTRICA E MINERALÓGICA DE ÁREAS COM
POTENCIAL RADIOATIVO NOS ESTADOS DA PARAÍBA E DO RIO GRANDE DO
NORTE**

Tese apresentada ao Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares da Universidade Federal de Pernambuco, como requisito para obtenção do título de Doutor em Ciências.

Aprovado em: 24/05/2019.

BANCA EXAMINADORA

Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior (Orientador)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Emmanuel Damilano Dutra (Examinador Interno)
Universidade Federal de Pernambuco

Prof. Dr. Alberto Antônio da Silva (Examinador Externo)
Instituto Federal de Pernambuco - Campus Ipojuca

Prof^ª. Dr^ª. Mariana Brayner Cavalcanti Freire Bezerra (Examinadora Externa)
Universidade Federal de Pernambuco

A Deus, minha força e razão de existir;
Aos meus pais, meus orgulhos;
Ao meu irmão, homem honesto e batalhador;
A minha noiva e futura esposa, a quem amo e agradeço a paciência e apoio;
A Adilson Couto (*in memoriam*) - Locutor Esportivo, a quem tenho grande admiração.

Dedico.

AGRADECIMENTOS

Doutorado não é algo fácil. Poucos chegam até o fim. Por isso, se faz necessário agradecer.

Em primeiro lugar, agradeço a Deus, Senhor do Tempo e da História. Em alguns momentos desta longa e árdua caminhada, um vazio existencial ensaiava se instalar em minha vida. Vivi sentimentos ruins jamais experimentados, mas este, que é o Senhor da minha vida, em quem me agarrei, me fez seguir em frente, 'fazendo-me forte, enquanto sentia-me fraco' (2 Coríntios 12, 10b).

Aos meus pais, Ana e Adauto, que são meu orgulho. Por eles e visando dar-lhes uma melhor condição de vida futura, é que, todos os dias, saía de minha casa em direção ao DEN. Rogo a Deus que lhes conceda muitos anos de vida e condição de saúde para que vejam os rumos que tenho dado a minha vida; que vejam os frutos de meu esforço e trabalho. Minha obsessão é, sempre foi e será, ser motivo de orgulho para eles.

Ao meu irmão, Indyanno, que tem batalhado bastante em sua ascensão acadêmica e social. Apesar de algumas diferenças, normais entre irmãos, me apoia bastante, ao seu modo. Registre-se meu orgulho por ser o homem que é. Tem meu mais profundo respeito e desejo de sucesso em sua vida. À minha cunhada, Amanda, faço menção por ter prestado auxílio ao meu pai, nos dias difíceis que tivemos, quando de sua internação no Hospital Otávio de Freitas. Não foi fácil escrever uma Tese e cumprir prazos regimentais, enquanto estava com meu pai internado. Sua ajuda e disponibilidade neste momento foram de grande valia e merecem o devido agradecimento. Deus abençoe!

À minha noiva, Andrêta Maria, a quem quero, num futuro breve, tê-la como esposa. Só fiz esse doutorado por sua causa. Obrigado pelo incentivo. Pela Paciência. Por acreditar em mim. Passei esse período todo, buscando a estabilidade de nossa vida futura. Sabes bem que sou muito feliz ao teu lado. E serei muito mais! À minha sogra, Dona Goretti, a quem tenho como uma mãe, digo que seguiremos unidos em seu apoio, buscando sermos felizes, pois felicidade é algo que a senhora merece ter, já que sempre fez por merecer!

Em termos acadêmicos, ao meu orientador, o Prof. Dr. José Araújo dos Santos Júnior, que acreditou em mim, desde os tempos de aluno em fim de graduação. Muito obrigado pelos ensinamentos transmitidos, que foram inúmeros; pela paciência comigo e por sempre proporcionar o melhor, em termos de estrutura, para o desenvolvimento deste trabalho. Aprendi muito com o senhor e espero seguir parceiro no contexto profissional. Neste contexto, aproveito para expressar meus sinceros e profundos agradecimentos à sua família,

em especial, seus pais - Dona Socorro e Seu Zé de Elói - e sua Tia Nevinha. Pessoas maravilhosas, que nos acolheram em sua casa como filhos e nos ajudaram demais, dando suporte às coletas de amostra. Que Deus os abençoe, São José, Padroeiro do Município, e São Pedro, o qual se celebra com bastante efusão, os proteja sempre!

Ao Prof. Dr. Romilton dos Santos Amaral, líder do Grupo de Estudos em Radioecologia (RAE), de quem tive o orgulho de ser orientado no mestrado, meus sinceros e profundos agradecimentos. Obrigado pelas valiosas ajudas, chamadas de atenção e pelo acolhimento ao grupo, quando nele cheguei, em 2010. Segue sendo uma das minhas referências de professor, principalmente no fino trato com os alunos.

Aos membros do Comitê de Acompanhamento e da Banca Examinadora desta Tese. Muito obrigado pelas valiosas contribuições que ajudaram a compor este trabalho.

Aos colegas do Grupo RAE. Neste grupo, ocorreu o mais difícil: Formamos uma equipe. No sentido pleno da palavra. O 'Eu', tão característico do mundo acadêmico *strictu sensu*, foi trocado pelo 'nós', tão oportuno para as relações humanas. Aqui, quando alguém ganha, todos ganham. E, quando alguém perde, todos perdem. A todos vocês, o meu muito obrigado. De coração! Aos Pós-doutorandos, Zahily e Jairo, este último, grande apoiador e incentivador em meu início de trajetória no DEN; Aos novatos, Marcela, Ricardo, Vinícius, Andrey, Julieta, Marcelo, Maria Eduarda e Gian, que mantenham no grupo este espírito colaborativo, que nos é tão marcante no Departamento; Bruno Amaral, Arykerne Casado, Ariosto Marques, Filipe Correia (o chorão do Nescau! kkkkk), Nilson Medeiros; Aos amigos cubanos, Lino e Marvic, pessoas de convivência extremamente positiva; aos amigos Alberto Silva, Otávio Santos e Luis Rodrigo, meus sinceros agradecimentos, por me ajudarem substancialmente na conquista de meu sonho: o de ser servidor público federal. Professor, igual a vocês! Além do que, são pessoas excepcionais! Peço a Deus que abençoe a todos os membros deste grupo. Se não fôssemos tão unidos e não buscássemos estabelecer este clima tão saudável de trabalho, certamente, não conseguiria chegar até o fim deste caminho!

À todos aqueles que auxiliaram a realização desta Tese:

- À Universidade Federal de Pernambuco, Instituição PÚBLICA, de qualidade e PARA TODOS, que me concedeu toda a estrutura possível, através dos Departamentos de Energia Nuclear (minha casa); Engenharia de Minas e de Geologia;
- À CAPES (Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Nível Superior), pelo auxílio financeiro, na concessão de bolsa de estudos; Ao técnico em laboratório e

amigo Tiago Araújo, atualmente no Departamento de Engenharia Química (DEQ), que foi um verdadeiro anjo em minha pesquisa, conduzindo-me aos locais certos e as pessoas certas, tais como: o Instituto de Tecnologia de Pernambuco (ITEP), com o Osmar, que realizou as Análises de Difractometria de Raios-X; a Professora Lucila, do CTG, que nos indicou a utilização de radiação UV na avaliação das amostras, além de ter indicado o João Pedro e sua noiva, pessoas fundamentais na realização da descrição petrográfica de minhas amostras.

Aos funcionários do DEN, que nas suas respectivas funções, propiciam o bom andamento das atividades do Departamento. Incluo neste tópico, meu amigo e irmão, Prof. Dr. Jair Bezerra, onde tive a honra da companhia no Estágio-Docência na Graduação em Engenharia de Energia. Muito obrigado pela amizade e apoio; aos responsáveis pela Limpeza e Conservação, representada pela querida “Lia”; Segurança, representado pelo amigo Josenildo; Área Administrativa, nas pessoas de Alene, Norma e Floriano; Secretaria do PROTEN, nas pessoas de Nilvânia e Kalydja; Tecnologia da Informação, na pessoa de David; Biblioteca, na pessoa de Carlos e Laboratório, na pessoa do dileto e querido amigo, a quem tenho como um avô, Edimilson Costa e Silva. Muito obrigado pela convivência e amizade. Que Deus os abençoe muito!

E a vocês que torceram por mim: Meu MUITO OBRIGADO! Muitos amigos e amigas que, à distância, acompanharam a minha jornada e que disseram um "Estou rezando por você!". Não há dinheiro no mundo que pague o carinho recebido! Em minha dissertação, parafraseei a cantora Católica Romana Adriana Arydes, dizendo que sou como “um barco a vela solto pelo mar! E vou pra onde o vento do Senhor levar!”. A ideia é a mesma. Peço que me coloquem em suas orações, para que meu futuro seja bom e fincado na rocha, que é Deus. Abraço grande! De coração! Deus os abençoe!

RESUMO

O nordeste brasileiro é uma região com grande número de ocorrências radioativas naturais, com destaque para os Estados da Paraíba e Rio Grande do Norte, especificamente as regiões Seridó Oriental Potiguar e Seridó Ocidental Paraibano, geologicamente caracterizadas pela presença de afloramentos rochosos com minerais radioativos associados aos granitos e pegmatitos. Regiões que tendem a apresentar níveis diferenciados de radioatividade natural e, conseqüentemente, maior relevância radioecológica, tem sido objeto de avaliação radiométrica e dosimétrica. Considerando a importância da realização desses estudos, o presente trabalho avaliou os níveis de radioatividade natural e realizou caracterização mineralógica de rochas presentes nos municípios de Carnaúba dos Dantas, Jardim do Seridó, Parelhas e Santana do Seridó, no Estado do Rio Grande do Norte, além de áreas nos municípios de Junco do Seridó, Santa Luzia, São José do Sabugi e São Mamede, no Estado da Paraíba. A avaliação radiométrica foi realizada pela medida das atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de rocha, utilizando sistema de espectrometria gama de alta resolução. A caracterização mineralógica das rochas foi realizada através da observação de lâminas delgadas em microscópio petrográfico equipado com sistema de luz transmitida e captura de imagens em sistema digital. As atividades específicas médias para U, Ra, Th e K foram de $1.913,6 \pm 2.358,9$; $887,6 \pm 972,4$; $152,8 \pm 111,1$ e $1.249,8 \pm 453,8$ Bq.kg⁻¹, respectivamente, apresentando níveis médios de 3 a 58 vezes superiores às médias da crosta terrestre e entre 1,05 a 91,12 vezes superiores a outros estudos semelhantes, presentes na literatura, com os valores mais elevados obtidos nos municípios paraibanos de São Mamede, Santa Luzia, São José do Sabugi e, em ponto específico, no município de Carnaúba dos Dantas/RN. A Taxa de Dose Efetiva Ambiental média obtida foi de $1,26 \pm 1,35$ mSv.a⁻¹, 18 vezes superior ao valor de referência para exposição gama externa. Para o Rádio Equivalente (Ra_{eq}), o valor médio encontrado foi de $1.202,4 \pm 1.010,8$ Bq.kg⁻¹, cerca de 3,3 vezes superior ao valor de referência mundial. Quanto aos índices de risco de radiação externa e interna, foram identificados valores de até 29,4 vezes superiores ao limite recomendado. Os níveis diferenciados de radioatividade encontrados podem ser atribuídos à presença de minerais como a allanita, monazita, zircão, rutilo, biotita e feldspato potássico. Diante disso, é desaconselhada a utilização das rochas dos afloramentos investigados, como componente em materiais de construção e utensílios domésticos.

Palavras-chave: Ambiente. Dosimetria. Espectrometria. Radioatividade. Radioecologia.

ABSTRACT

Northeastern Brazil is a region with a large number of natural radioactive occurrences, especially the states of Paraíba and Rio Grande do Norte, specifically the Seridó Oriental Potiguar and Seridó Ocidental Paraibano regions, geologically characterized by the presence of rocky outcrops with radioactive minerals associated with granites and pegmatites. Regions that tend to present differentiated levels of natural radioactivity and, consequently, greater radioecological relevance, have been subjected to radiometric and dosimetric evaluation. Considering the importance of conducting these studies, the present work evaluated the levels of natural radioactivity and performed a mineralogical characterization of rocks present in the municipalities of Carnaúba dos Dantas, Jardim do Seridó, Parelhas and Santana do Seridó, in the State of Rio Grande do Norte and of areas in the municipalities of Junco do Seridó, Santa Luzia, São José do Sabugi and São Mamede, in the State of Paraíba. The radiometric evaluation was performed by measuring the specific activities of ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K in rock samples using a high resolution gamma spectrometry system. The mineralogical characterization of the rocks was performed through the observation of thin slides in a petrographic microscope equipped with a transmitted light system and digital image capture. The average specific activities for U, Ra, Th and K were $1,913.6 \pm 2,358.9$; 887.6 ± 972.4 ; 152.8 ± 111.1 and $1,249.8 \pm 453.8 \text{ Bq.kg}^{-1}$, respectively, presenting average levels of 3 to 58 times higher than the average of the earth's crust and between 1.05 to 91.12 times superior to others the highest values obtained in the municipalities of São Mamede, Santa Luzia, São José do Sabugi and, in a specific point, in the municipality of Carnaúba dos Dantas/RN. The average Environmental Effective Dose Rate obtained was $1.26 \pm 1.35 \text{ mSv.a}^{-1}$, 18 times higher than the reference value for external gamma exposure. For Equivalent Radio (Raeq), the average value found was $1,202.4 \pm 1,010.8 \text{ Bq.kg}^{-1}$, about 3.3 times higher than the world reference value. Regarding the indices of external and internal radiation risk, values up to 29.4 times higher than the recommended limit were identified. The differentiated levels of radioactivity found can be attributed to the presence of minerals such as allanite, monazite, zircon, rutile, biotite and potassium feldspar. Therefore, the use of the rocks of the outcrops investigated, as a component in construction materials and domestic utensils, is discouraged.

Keywords: Environment. Dosimetry. Spectrometry. Radioactivity. Radioecology.

LISTA DE FIGURAS

Figura 1 - Doses efetivas ambientais na população mundial provenientes de fontes naturais	20
Figura 2 - Representação esquemática do decaimento do ^{40}K	28
Figura 3 - Sistema de Espectrometria Gama com Detector Semicondutor	37
Figura 4 - Microscópio de luz transmitida (A) utilizado para observação de Rocha em Lâmina delgada fina (B)	41
Figura 5 - Fenômeno de Difração de Raios X, conforme a Lei de Bragg	42
Figura 6 - Exemplo de Difratoograma referente ao Quartzo	44
Figura 7 - Representação geográfica dos Municípios que compõem a Área de Estudo	45
Figura 8 - Mapa contendo os pontos de coleta georeferenciados e informações geológicas da área de estudo	49
Figura 9 - Sistema de Medidas com detector HPGe	51
Figura 10 - Reta de Calibração do Sistema de Medidas com detector HPGe	53
Figura 11 - Curva de Eficiência em Energia do Sistema de Medidas	56
Figura 12 - Atividades Específicas dos Radionuclídeos na Área de Estudo e respectivos valores médios globais de referência	68
Figura 13 - Teores de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras de rocha obtidas na Área de Estudo	69
Figura 14 - Fragmentos de Amostras de Rocha - Área de Estudo	73
Figura 15 - Fotos microscópicas de rochas: Amostra 11	73
Figura 16 - Fotos microscópicas de rochas: Amostras 11 (A), 18 (B) e 28 (C)..	74
Figura 17 - Fotos microscópicas de rochas: Amostras 11 (B), 13 (A e C) e 18 (D e E)	74
Figura 18 - Fotos microscópicas de rochas: Amostra 28	75
Figura 19 - Fotos microscópicas de rochas: Amostra 13	76
Figura 20 - Fotos microscópicas de rochas: Amostras 11 (B), 13 (E), 18 (A) e 28 (C e D)	76
Figura 21 - Níveis de Taxa de Dose Equivalente Efetiva a 1 m da superfície (H)	79
Figura 22 - Níveis de Rádio Equivalente para os Pontos Monitorados	83

LISTA DE TABELAS

Tabela 1	-	Detalhamento da Distribuição das doses efetivas ambientais	19
Tabela 2	-	Série Radioativa do ^{238}U	22
Tabela 3	-	Série Radioativa do ^{232}Th	23
Tabela 4	-	Dados Populacionais, com indicação da Área da Unidade Territorial, Densidade Demográfica e Altitude, dos municípios da Área de Estudo	46
Tabela 5	-	Dados referentes às Fontes Pontais utilizadas na Calibração do Sistema de Medidas	53
Tabela 6	-	Exemplo de Difratoograma referente ao Quartzo	55
Tabela 7	-	Atividades Mínimas Detectáveis pelo Sistema de Medidas	58
Tabela 8	-	Dados Referentes às Amostras de Rocha da Área de Estudo	66
Tabela 9	-	Comparativo de Atividades Específicas: Presente estudo com outros realizados mundialmente	70
Tabela 10	-	Distâncias Interplanares para os minerais identificados nas Amostras de Rocha Estudadas	78
Tabela 11	-	Comparativo entre os dados médios da Taxa de Dose Equivalente Efetiva: Presente estudo versus estudos mundiais	81
Tabela 12	-	Comparativo entre os dados médios de H, R_{eq} , H_{in} e H_{ex} : Presente estudo versus estudos mundiais	84

LISTA DE EQUAÇÕES

Equação 1 - Cálculo da Resolução em Energia	38
Equação 2 - Cálculo da Eficiência de Detecção	38
Equação 3 - Equação Demonstrativa da Lei de Bragg	42
Equação 4 - Cálculo de Determinação das Energias Gama de interesse detectáveis pelo sistema de medidas em função da localização dos canais centrais	54
Equação 5 - Ajuste da Função Lorentz e Simulação computacional	56
Equação 6 - Cálculo do Limite de Detecção para o detector HPGe	57
Equação 7 - Cálculo das Atividades Mínimas Detectáveis	57
Equação 8 - Cálculo da Contagem Líquida da Área do Fotopico	58
Equação 9 - Cálculo das Atividades Experimentais do ^{40}K	58
Equação 10 - Cálculo das Atividades Experimentais do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th	59
Equação 11 - Cálculo dos Teores dos Radionuclídeos	59
Equação 12 - Cálculo da Atividade Específica Teórica para cada Radionuclídeo.	60
Equação 13 - Cálculo da Estatística W - Shapiro-Wilk	61
Equação 14 - Cálculo da Taxa de Dose Absorvida devido à Radiação Gama Natural	62
Equação 15 - Cálculo da Taxa de Dose Equivalente Efetiva para Radiação Gama Natural a 1 m da superfície	62
Equação 16 - Cálculo do Rádio Equivalente (R_{eq})	63
Equação 17 - Cálculo do Índice de Risco de Radiação Externa (H_{ex})	64
Equação 18 - Cálculo do Índice de Risco de Radiação Interna (H_{in})	64

SUMÁRIO

1	INTRODUÇÃO	15
2	OBJETIVOS	18
2.1	OBJETIVO GERAL	18
2.2	OBJETIVOS ESPECÍFICOS	18
3	REVISÃO DE LITERATURA	19
3.1	RADIOATIVIDADE AMBIENTAL	19
3.1.1	Radioatividade Natural	19
3.1.2	Urânio	24
3.1.3	Rádio	25
3.1.4	Tório	26
3.1.5	Potássio	27
3.2	EQUILÍBRIO RADIOATIVO	29
3.3	MONITORAÇÃO RADIOMÉTRICA AMBIENTAL	30
3.3.1	Dosimetria Ambiental e Índices de Risco da Radiação Gama	31
3.4	ESPECTROMETRIA GAMA	34
3.5	ROCHAS, PETROLOGIA E ANÁLISE PETROGRÁFICA	40
3.6	DIFRAÇÃO DE RAIOS X	41
4	MATERIAL E MÉTODOS	45
4.1	CARACTERIZAÇÃO DA ÁREA DE ESTUDO	45
4.2	COLETA DAS AMOSTRAS DE ROCHA	48
4.3	PREPARO E ACONDICIONAMENTO DAS AMOSTRAS DE ROCHA	49
4.4	ANÁLISE ESPECTROMÉTRICA GAMA DAS AMOSTRAS DE ROCHA	50
4.4.1	Sistema de Medidas	50
4.4.2	Parâmetros considerados na realização das análises	51
4.4.3	Calibração do Sistema de Medidas	52
4.4.4	Curva de Eficiência	54
4.4.5	Limites de Detecção e Atividades Mínimas Detectáveis	56
4.4.6	Determinação da área líquida	58

4.4.7	Cálculo das atividades específicas do ^{238}U, ^{226}Ra, ^{232}Th e ^{40}K	58
4.5	CÁLCULO DOS TEORES DOS RADIONUCLÍDEOS	59
4.6	ANÁLISE DAS AMOSTRAS AMBIENTAIS	60
4.6.1	Análise Petrográfica.....	60
4.6.2	Difratometria de Raios X	60
4.7	AVALIAÇÃO ESTATÍSTICA DOS DADOS	61
4.8	ESTIMATIVA DA DOSE DE RADIAÇÃO GAMA NATURAL	62
4.8.1	Cálculo da taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural	62
4.8.2	Cálculo da taxa de dose equivalente efetiva devido a radiação gama natural	62
4.8.3	Rádio Equivalente	63
4.9	ÍNDICES DE RISCO DA RADIAÇÃO GAMA	64
4.9.1	Índices de Risco de Radiação Externa (H_{ex}) e Interna (H_{in})	64
5	RESULTADOS E DISCUSSÕES	65
5.1	ATIVIDADES ESPECÍFICAS E TEORES DOS RADIONUCLÍDEOS	65
5.1.1	Atividades Específicas - Análise Intercomparativa utilizando Estudos Mundiais	70
5.2	AVALIAÇÃO DE AMOSTRAS COM NÍVEIS DIFERENCIADOS DE RADIOATIVIDADE	72
5.2.1	Análise por Radiação Ultravioleta	72
5.2.2	Análise Petrográfica	73
5.2.3	Análise por Difratometria de Raios-X	77
5.3	PARÂMETROS RADIOMÉTRICOS	79
5.3.1	Taxa de Dose Equivalente Efetiva Ambiental (H)	79
5.3.1.1	Taxa de Dose Equivalente Efetiva Ambiental (H) - Análise Intercomparativa utilizando Estudos Mundiais	81
5.3.2	Rádio Equivalente (R_{eq}) e Índices de Risco de Radiação Externa (H_{ex}) e Interna (H_{in})	82
5.3.2.1	R_{eq} , H_{ex} e H_{in} - Análise Intercomparativa utilizando Estudos Mundiais	84
6	CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES	86
	REFERÊNCIAS	87

1 INTRODUÇÃO

A Radioatividade está presente no planeta desde os seus primórdios, propiciando que todos os organismos estejam potencialmente expostos à radiação e, conseqüentemente, aos seus possíveis efeitos. Em virtude disso, tornou-se necessário verificar a presença e o comportamento dos radionuclídeos nos compartimentos ambientais e no homem, monitorando-os através dos estudos radioecológicos, permitindo assim, que sejam mensurados os impactos decorrentes da interação com a radiação e atendidos os princípios de proteção radiológica.

Dentre os estudos radioecológicos realizados ao redor do mundo, tem sido dada atenção especial àqueles que buscam avaliar áreas que apresentem níveis diferenciados de radionuclídeos naturais, em especial, ^{238}U , ^{232}Th e seus descendentes, além do ^{40}K , já que tais radionuclídeos primordiais são considerados os principais contribuintes dos níveis de exposição humana, correspondendo a aproximadamente 85% da exposição, quando se consideram apenas as fontes naturais de radioatividade ambiental (UNSCEAR, 2008).

No planeta, as principais áreas monitoradas com ocorrências relevantes de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K estão em Yangjiang, na província de Guangdong, na China; nas faixas costeiras de Kerala (Karunagappally), Tamil Nadu e Orissa, na Índia, por conta da presença do mineral monazita; em Ramsar, ao norte do Irã, em fontes termais ativas e dinâmicas que continuamente bombeiam água contendo ^{226}Ra para as áreas de seu entorno; e na Bohemia Central, na República Tcheca, em intrusões vulcânicas, neste último caso, com taxas de exposição externa variando entre 9×10^{-5} a $1,7 \times 10^{-4}$ mSv.a^{-1} , respectivamente (EISENBUD; GESELL, 1997; UNSCEAR, 2008; SOHRABI, 2013; ALIYU; RAMLI, 2015).

No Brasil, a quantidade de áreas cujos níveis de radioatividade natural se apresentam comprovadamente elevados é grande, com destaque para alguns monitoramentos realizados na região sudeste, como nos casos das regiões das intrusões vulcânicas de Poços de Caldas, Araxá e Tapira, no Estado de Minas Gerais e das areias monazíticas ao longo da faixa litorânea do Estado do Espírito Santo, em Guarapari. Na região nordeste, são destacados os casos de Caetitê e Lagoa Real, no sudeste do Estado da Bahia; de Itataia, na região central do Estado do Ceará, cujo depósito inclui minério de fósforo contendo U associado; das ocorrências de rochas fosfáticas na faixa litorânea nos estados de Pernambuco e Paraíba; das ocorrências anômalas de U e Th em rochas cálcio silicáticas anfibolíticas e graníticas, nos municípios de Pedra e Venturosa, em Pernambuco; da ocorrência uranífera de São José de Espinharas, na Paraíba, e de ocorrências diferenciadas de U e Th em algumas localidades do

Rio Grande do Norte (MACIEL & CRUZ, 1973; AMARAL, 1987; ALENCAR; FREITAS, 2005; BENEDETTO, 2006; SANTOS JÚNIOR, 2009; DNPM, 2009).

Os Estados da Paraíba e do Rio Grande do Norte são regiões relevantes para a realização de estudos radiométricos, já que estão localizadas nas regiões do Seridó e da Borborema, caracterizadas pela existência de um número considerável de afloramentos rochosos, originados da separação dos blocos arqueobrasileiro e arqueoafricano, cujos processos erogênicos e as rupturas epeirogênicas produziram extrusões de magma e material alcalino subvulcânico junto com intrusões de magma basáltico. Como resultado, os minerais radioativos associados a estes processos, ocorrem em toda a região, como por exemplo, os pegmatitos, granitos, gnaisses, metaconglomerados e alguns minerais secundários de U, Th e K (uraninita, meta-autunita, fosfouraninita, beta-uranofano, gadolinita, torita, torianita, biotita, ortoclásio, etc.) (MALANCA; ACHILLI; FABBRI, 1996).

Tais características despertaram nas últimas décadas, o interesse na realização de estudos, que propiciassem obter um maior conhecimento sobre a radiometria da região. Num primeiro momento, o viés destes estudos era econômico, como no caso do Projeto Seridó NE-301 realizado pelo Serviço Geológico Nacional (CPRM) em convênio com a Comissão Nacional de Energia Nuclear, a partir de 1972, cujo objetivo foi realizar a caracterização geológica da região, definindo áreas com potencialidades uraníferas para provável extração comercial. Estudos de grande porte como este, identificaram, mediante a utilização de aerogamaespectrometria, a existência de 280 anomalias de urânio e 23 anomalias de urânio/tório, com destaque para algumas ocorrências nos Municípios de Currais Novos, Parelhas e Equador (BRASIL, 1973).

À medida que a presença da radioatividade em níveis diferenciados era comprovada na região, naturalmente, o viés destes estudos ganhou um novo paradigma: o radioecológico, voltado prioritariamente para o monitoramento dos níveis de radioatividade da região e respectiva busca da garantia dos princípios de proteção radiológica às populações diretamente expostas.

Para isso, ao longo do tempo, estudos com tais características foram sendo conduzidos, seja para análise das atividades específicas de radionuclídeos primordiais em amostras de solo e rocha, em parte dos municípios do Rio Grande do Norte; para monitorar os níveis de exposição em ambientes diversos utilizando cintilômetros portáteis e dosimetria termoluminescente, em Santana do Matos/RN; para avaliar a existência de ocorrências uraníferas anômalas, como nos casos de São José de Espinharas e Pocinhos, na Paraíba, ou ainda com o objetivo de monitorar os níveis de radônio em habitações, locais de trabalho e

minas para exploração comercial, em Currais Novos, no Rio Grande do Norte (ADUSUMILI & DE CASTRO, 1990; MALANCA et al., 1996; MALANCA; GADOLFI, 1996; MALANCA; GADOLFI, 1997; SILVA et al., 2010; SOUZA et al., 2012; SILVA, 2014; BEZERRA, 2015).

O presente estudo, abrange localidades nos municípios de Carnaúba dos Dantas, Jardim do Seridó, Parelhas e Santana do Seridó, no Estado do Rio Grande do Norte, além de áreas nos municípios de Junco do Seridó, Santa Luzia, São José do Sabugi e São Mamede, no Estado da Paraíba, inseridos nas Mesorregiões Central Potiguar e Borborema e nas Microrregiões do Seridó Oriental Potiguar e Seridó Ocidental Paraibano dos Estados do Rio Grande do Norte e da Paraíba - Nordeste Brasileiro, cujas características geológicas - motivação primeira da realização deste trabalho - foram anteriormente abordadas.

Além disso, nos municípios em questão, ainda não foram realizadas pesquisas nos moldes aqui propostos, com vistas a monitorar os radionuclídeos naturais existentes (^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K), buscando estabelecer valores que venham a ser considerados como um indicativo de referência para tais radionuclídeos, possibilitando assim, a elaboração de um perfil radiométrico de tais localidades. Esta escassez de informação com o nível de detalhamento aqui executado justifica o interesse na realização de trabalhos nestas áreas, permitindo que sejam obtidos dados relevantes e que tragam informações relacionadas à exposição da população diretamente afetada por ocorrências radioativas naturais e seus prováveis riscos associados.

2 OBJETIVOS

2.1 OBJETIVO GERAL

O estudo teve como objetivo, avaliar os níveis do ^{238}U e seu descendente ^{226}Ra , ^{232}Th e o ^{40}K , em amostras de rocha coletadas em afloramentos localizados em alguns dos municípios da Paraíba e do Rio Grande do Norte utilizando espectrometria gama de alta resolução, estimando a dosimetria radioecológica e caracterizando os minerais presentes nas matrizes rochosas, através de microscopia ótica.

2.2 OBJETIVOS ESPECÍFICOS

- a. Realizar um monitoramento radiométrico e dosimétrico da área em questão, através da determinação das atividades específicas de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K e da estimativa dos níveis de dose de radiação gama natural correspondentes e comparar com os valores de referência existentes na literatura e definidos pela UNSCEAR.
- b. Determinar os níveis de rádio equivalente (Ra_{eq}) e Índices de risco de radiação externa (H_{ex}) e interna (H_{in}), com vistas a estimar o risco, caso exista, da utilização do material avaliado, como componente em materiais de construção.
- c. Caracterizar as amostras, sob a ótica mineralógica, identificando a presença de minerais radioativos e sua respectiva relação com as atividades específicas e parâmetros dosimétricos avaliados.
- d. Contribuir com um banco de dados radiométrico referente às áreas monitoradas, possibilitando assim, a definição de valores de referência para tais localidades.
- e. Fornecer informações dosimétricas e de localização geográfica de áreas com níveis diferenciados de radioatividade natural, até então desconhecidas da comunidade acadêmico-científica especializada, em âmbito nacional e internacional.

3 REVISÃO DE LITERATURA

3.1 RADIOATIVIDADE AMBIENTAL

A Radioatividade encontra-se presente no planeta desde a sua formação, principalmente pelos radionuclídeos que constituem a crosta terrestre - os chamados NORM (do inglês *Naturally Occurring Radioactive Material*) e também pelas fontes cósmicas, o que resulta na exposição de todo e qualquer ser vivo à radiação ionizante. A este conjunto de radiações às quais os seres vivos se encontram expostos de maneira permanente, dá-se o nome de radiação de fundo ou do inglês “*background*” (WANG et al., 2015).

De acordo com o Comitê Científico das Nações Unidas para os Efeitos das Radiações Atômicas (UNSCEAR - do inglês *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation*), mais de 70% da exposição à radioatividade ambiental são provenientes das fontes naturais de radiação, enquanto que, aproximadamente 30% tem sua origem em fontes antrópicas, que são desenvolvidas pelo homem e que utilizam elementos radioativos para diversas finalidades, como por exemplo, o diagnóstico médico, o ciclo do combustível nuclear, a produção nucleoe elétrica, a utilização em testes nucleares com finalidade militar, além de outras atividades (UNSCEAR, 2008), conforme expresso na Tabela 1.

Tabela 1 - Detalhamento da Distribuição das doses efetivas ambientais.

ORIGEM	DOSE EFETIVA (mSv.a ⁻¹)	CONTRIBUIÇÃO (%)
Radiação Natural	2,4	70,33
Diagnóstico Médico	1,0	29,31
Testes Nucleares	0,01	0,29
Ocupacional	0,002	0,06
Produção Nucleoe elétrica	0,0002	0,01

Fonte: UNSCEAR (2008).

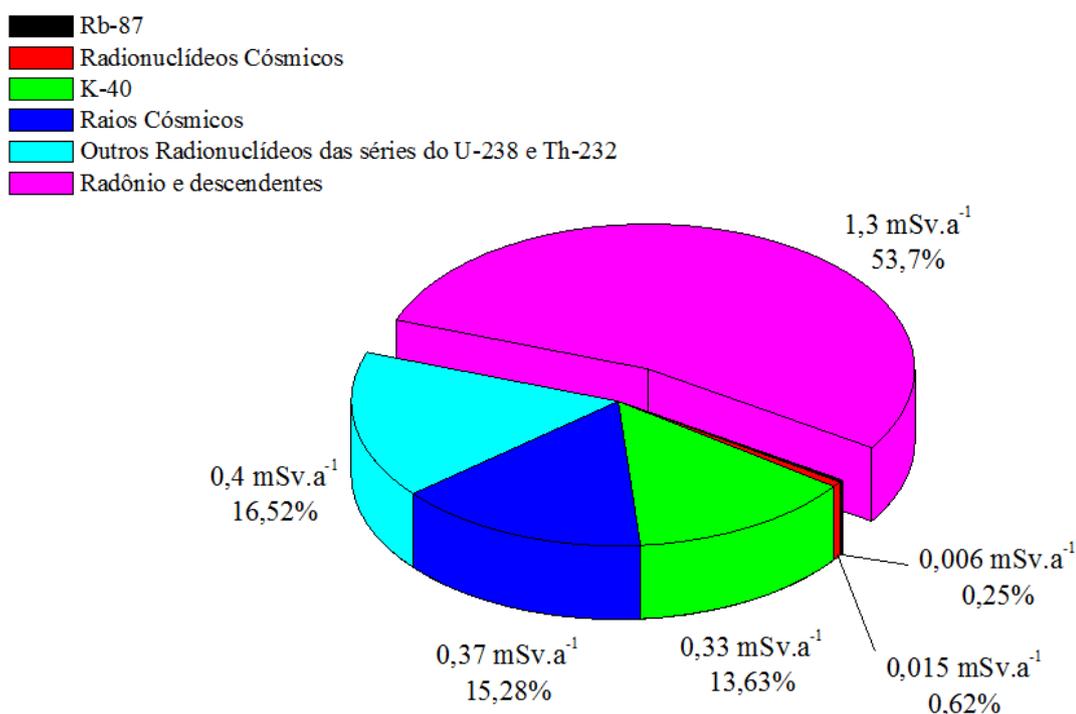
3.1.1 Radioatividade Natural

A relevante contribuição das fontes naturais, em termos da distribuição das doses efetivas ambientais, despertou nas últimas décadas, um forte interesse da comunidade científica sobre o tema, principalmente no que diz respeito à mensuração da dose recebida pelo homem e o possível impacto sofrido por ele, devido à sua exposição contínua a radiação natural.

É importante observar que, alguns fatores podem influenciar os níveis de exposição originados da radiação natural, como por exemplo, a altitude da área em questão em relação ao nível do mar, ou ainda, o tipo e a quantidade de radionuclídeos presentes no corpo humano. A exposição à radiação pode ser externa, através de fontes radioativas emissoras presentes fora do corpo ou interna, mediante a incorporação dos radionuclídeos por ingestão, inalação ou ainda por inoculação (SOWMITHRA et al., 2015).

Dentre as principais fontes naturais de radioatividade, conforme expresso na Figura 1, estão as fontes cósmicas (no caso dos raios cósmicos e dos radionuclídeos cosmogênicos), além da radioatividade terrestre, que é considerada a principal forma de contribuição para os níveis de exposição externa do homem à radiação gama, devido aos radionuclídeos primordiais presentes no planeta desde a sua formação (^{87}Rb , ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K), bem como, por seus produtos de decaimento, nos casos dos precursores das principais séries radioativas naturais (SANTOS JÚNIOR, 2009).

Figura 1 - Doses efetivas ambientais na população mundial provenientes de fontes naturais.



Fonte: UNSCEAR (2008).

Os isótopos do radônio (Rn) e seus produtos de decaimento, representam cerca de 53,70% da exposição ao ser humano (ICRP, 1993). Dentre os que apresentam ocorrência natural (^{222}Rn , ^{220}Rn e ^{219}Rn), nas três principais séries radioativas, destaca-se o ^{222}Rn , por seu

elevado tempo de meia-vida (3,8 dias), quando comparado aos demais, cuja meia-vida é da ordem de segundos. Este isótopo, caso inalado, possui elevado risco radiológico, já que seus descendentes, à medida que são formados pelo processo de decaimento radioativo, emitem partículas alfa, com elevado poder de ionização, aliado ao fato de serem formados outros elementos emissores β/γ . A severidade dos danos causados ao ser humano varia de acordo com a quantidade de radônio inalada, com o tempo de exposição e com a idade (AMARAL, 1994; AFONSO, 2009).

Quanto ao ^{238}U e do ^{232}Th , precursores das principais séries radioativas naturais (Tabelas 2 e 3), a contribuição de 16,52% na dose ambiental recebida pela população mundial deve-se principalmente aos radionuclídeos formados durante seus processos de decaimento radioativo, excluído o ^{222}Rn , e que são importantes sob a ótica radioecológica, como nos casos dos isótopos do rádio, ^{226}Ra e ^{228}Ra . Durante a formação destes radionuclídeos, normalmente ocorre a emissão de partículas alfa, beta e radiação gama associada, em níveis diferenciados (AMARAL, 1987; SILVA, 2014).

Tabela 2 - Série Radioativa do ^{238}U .

Nuclídeo	Meia-Vida	Maiores Energias de Radiação (MeV) e Intensidades*		
		α	β	Γ
^{238}U	$4,468 \times 10^9$ a	4,15 (23%) 4,19 (77%)	-	-
\downarrow ^{234}Th	24,1 d	-	0,103 (19%) 0,191 (81%)	0,063 (3,5%) 0,093 (4,0%)
\downarrow ^{234}Pa	1,18 m	-	2,29 (98%)	0,765 (0,30%) 1,001 (0,60%)
\swarrow 99,86% \searrow 0,14% ^{234}Pa	6,7 h	-	0,53 (66%) 1,13 (13%)	0,10 (50%) 0,70 (24%) 0,90 (70%)
\downarrow ^{234}U	$2,48 \times 10^5$ a	4,72 (28%) 4,77 (72%)	-	0,053 (0,2%)
\downarrow ^{230}Th	$7,52 \times 10^4$ a	4,62 (24%) 4,68 (76%)	-	0,068 (0,6%) 0,142 (0,07%)
\downarrow ^{226}Ra	1602 a	4,60 (5,5%) 4,78 (94,5%)	-	0,186 (4%)
\downarrow ^{222}Rn	3,825 d	5,49 (100%)	-	0,510 (0,07%)
\swarrow 99,98% \searrow 0,02% ^{218}Po	3,05 m	6,11 (100%)	0,33 (100%)	-
\downarrow ^{214}Pb	26,8 m	-	1,03 (6%) 0,295 (19%) 0,352 (36%)	-
\swarrow 99,96% \searrow 0,04% ^{214}Bi	19,7 m	5,61 (100%)	3,26 (100%)	0,609 (46%) 1,120 (17%) 1,764 (17%)
\downarrow ^{214}Po	164 μs	7,83 (100%)	-	0,799 (0,014%)
\swarrow 100% \searrow 1×10^{-5} % ^{210}Bi	1,32 m	-	2,3 (100%)	0,296 (80%) 0,795 (100%) 1,310 (21%)
\downarrow ^{210}Pb	22 a	3,7 ($1,8 \times 10^{-8}$ %)	0,017 (85%) 0,064 (15%)	0,047 (4%)
\swarrow 100% \searrow 1×10^{-5} % ^{210}Bi	5,02 d	4,93 (60%) 4,89 (34%) 4,59 (5%)	1,155 (100%)	-
\downarrow ^{210}Po	138,3 d	5,30 (100%)	-	0,803 (0,0011%)
\swarrow 100% \searrow 1×10^{-5} % ^{206}Tl	4,19 m	-	1,520 (100%)	-
\downarrow ^{206}Pb	ESTÁVEL	-	-	-

Fonte: TECDOC IAEA (2003).

* As Intensidades se referem a percentagem de desintegrações do nuclídeo em si, não ao precursor da série.

Tabela 3 - Série Radioativa do ^{232}Th .

Nuclídeo	Meia-Vida	Maiores Energias de Radiação (MeV) e Intensidades*		
		α	β	γ
^{232}Th	$1,39 \times 10^{10}$ a	3,95 (24%) 4,01 (76%)	-	-
↓				
^{228}Ra	5,75 a	-	0,055 (100%)	-
↓				
^{228}Ac	6,13 h	-	2,11 (100%)	0,34 (15%) 0,908 (25%) 0,96 (20%)
↓				
^{228}Th	1,913 a	5,34 (28%) 5,42 (71%)	-	0,084 (1,6%) 0,214 (0,3%)
↓				
^{224}Ra	3,64 d	5,45 (5,5%) 5,68 (94,5%)	-	0,241 (3,7%)
↓				
^{220}Rn	55,6 s	6,30 (~100%)	-	0,55 (0,07%)
↓				
^{216}Po	0,145 s	6,78 (100%)	-	-
↓				
^{212}Pb	10,64 h	-	0,58 (100%)	0,239 (47%) 0,300 (3,2%)
↓				
^{212}Bi	60,5 m	6,05 (70%) 6,09 (30%)	2,25 (100%)	0,040 (2%) 0,727 (7%) 1,620 (1,8%)
64% ↓				
^{212}Po	304 ns	8,78 (100%)	-	-
36% ↓				
^{208}Tl	3,1 m	-	1,80 (100%)	0,511 (23%) 0,583 (86%) 0,860 (12%) 2,614 (100%)
↓				
^{208}Pb	ESTÁVEL	-	-	-

Fonte: TECDOC IAEA (2003).

* As Intensidades se referem a percentagem de desintegrações do nuclídeo em si, não ao precursor da série.

3.1.2 Urânio

O urânio é um elemento considerado dúctil, maleável, de coloração prateada e que forma uma camada de óxido em sua superfície quando é exposto ao ar. Trata-se de um elemento químico instável que, na natureza, consiste de uma mistura isotópica, na qual três isótopos radioativos compõem o urânio natural, apresentando diferenciação em suas abundâncias: ^{234}U , que possui 0,0058% da fração de massa total do urânio; ^{235}U , que apresenta 0,71% e o ^{238}U , com aproximadamente 99,28% (HIRAYAMA, 1978; EISENBUD; GESELL, 1997).

O ^{238}U possui meia-vida física de $4,47 \times 10^9$ anos e meia-vida biológica que varia conforme o órgão ou tecido: entre 20 e 5.000 dias para os ossos; 6 dias para os rins e, em outros tecidos, a meia-vida biológica pode chegar a 1.500 dias. Possui uma atividade específica de $12,438 \text{ kBq.g}^{-1}$, sendo um emissor alfa, cujas energias são de 4,19 MeV (77%) e 4,15 MeV (23%) (SANTOS JÚNIOR, 2009; SILVA, 2014).

Sua distribuição ocorre ao longo de toda a crosta terrestre, sendo considerado mais abundante que o mercúrio, a prata e o cádmio. Destaca-se como um elemento constituinte da maior parte das rochas, através dos minerais primários e secundários nelas contidos, os quais totalizam mais de 100 tipos diferentes de minerais, com destaque para a uraninita e a coffinita, que são os principais minerais onde o urânio é encontrado com teores máximos de 88 e 74%, respectivamente, sendo a uraninita considerada o óxido mais importante. Em outros minerais de urânio onde seus teores são destacáveis, como nos casos da Pechblenda (60 - 70% de U) e da Brannerita (35,8% de U), observa-se também a presença de Elementos Terras Raras (TR), cuja correlação com os minerais de urânio é confirmada pela literatura (SANSONE et al., 2001; SANTOS JÚNIOR, 2009; PINTO, 2010; VASCONCELOS, 2010; DAMASCENA et al., 2015).

As concentrações de urânio no planeta são variadas, principalmente devido à formação geológica de cada área. Em média, o urânio apresenta um teor na crosta continental - o chamado clarke global - de aproximadamente $2,8 \text{ mg.kg}^{-1}$, considerado muito baixo, podendo apresentar teores que variam entre 0,5 e $6,1 \text{ mg.kg}^{-1}$, cujos níveis mais elevados encontram-se nas rochas graníticas ($2,2$ a $6,1 \text{ mg.kg}^{-1}$), principalmente nos pegmatitos graníticos, onde o referido elemento ocorre em um número considerável de minerais como: monazita, xenotimo, zircão, allanita, gadolinita, samarskita, uraninita e minerais secundários (CARDOSO, 1978; EISENBUD; GESELL, 1997). Nas rochas basálticas, os teores de urânio apresentam variação entre $0,1$ a 1 mg.kg^{-1} (SOUZA, 2006).

Quanto às rochas metamórficas, os granulitos, "... compostos por um mosaico de granulação fina de feldspatos", de acordo com Mehnert (1972), apresentam teores relevantes de urânio (em média, $4,9 \text{ mg.kg}^{-1}$). Aliado a isso, outros tipos de rochas metamórficas cujos teores médios de urânio em sua composição merecem destaque são a gnaiss (2 mg.kg^{-1}) e o xisto (2,5 mg.kg^{-1}). Quanto às rochas sedimentares, conglomerados contendo monazita e uraninita apresentam os teores de urânio mais elevados, juntamente com os fosfatos, no caso da linhita, cujos teores podem variar entre 50 a 300 mg.kg^{-1} , dependendo da localidade analisada (CARDOSO, 1978; SOUZA, 2006).

Em termos de mobilidade, o urânio é um elemento que, próximo à rocha de origem, é altamente móvel, podendo ser, em solução aquosa, facilmente oxidado e lixiviado das rochas graníticas e pegmatíticas as quais esteja contido, sendo depositado em sedimentos distantes da rocha originária (SANTOS JÚNIOR, 2009).

3.1.3 Rádio

É um elemento cuja presença ocorre em todas as séries naturais de decaimento radioativo e cuja existência na crosta terrestre é estimada em aproximadamente 1 ppt ou 1 ng.kg^{-1} . Possui seis isótopos radioativos, ^{223}Ra , ^{224}Ra , ^{225}Ra , ^{226}Ra , ^{227}Ra , ^{228}Ra , dentre os quais, os mais relevantes em termos radiológicos são o ^{226}Ra e o ^{228}Ra , por apresentarem um tempo de meia-vida elevado, quando comparado aos demais (1.622 e 5,8 anos, respectivamente). O ^{226}Ra também se destaca por emitir, em seu processo de decaimento, partículas alfa com energias de 4,78 MeV (94,5%) e 4,61 MeV (5,5%), formando o ^{222}Rn , cuja relevância em termos dosimétricos foi anteriormente mencionada (WILLIAMS; KIRCHMANN, 1990).

O Rádio é um elemento alcalino-terroso, cuja mobilidade no ambiente é considerada elevada, apresentando, dentre os diversos compartimentos ambientais, o maior potencial de transferência entre os radionuclídeos naturais, com contribuição considerável na exposição dos seres humanos à radiação natural.

Quanto à sua mobilidade no solo, pode ser verificado que o rádio se torna mais móvel em solos onde há a predominância de condições ácidas. Em solos nos quais o pH é baixo, esse efeito pode ser encontrado devido à presença de ácidos orgânicos. Sua atividade específica média, no solo, varia entre 17 a 60 Bq.kg^{-1} e possui um valor médio de 35 Bq.kg^{-1} , sendo que, nos solos cujas áreas não possuem alterações radioativas, a atividade média estimada de ^{226}Ra é de 25,9 Bq.kg^{-1} (MALANCA et al., 1993; UNSCEAR, 2000).

Nas rochas, sua proporção natural é da ordem de 10^{-12} g/g, sendo um elemento litófilo, que não forma minerais próprios, mas pode ser encontrado, em linhas gerais, muito disperso e substituindo outros elementos em minerais formados recentemente. Por ser muito reativo, raramente, ocorre sozinho e, via de regra, é originado do decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th , sendo o ^{226}Ra normalmente encontrado nas rochas em equilíbrio radioativo com o ^{238}U (EISENBUD; GESELL, 1997; OLIVEIRA, 1998).

Quanto aos seus riscos biológicos e radiológicos, o rádio é considerado relevante, já que é capaz de promover danos consideráveis nos seres humanos. Por apresentar comportamento bioquímico similar ao de outros metais alcalinos terrosos, como o cálcio, o rádio é incorporado de maneira mais fácil em ossos de mamíferos, onde o elemento permanece entre 70 a 90% retido, sendo que, uma pequena parte fica depositada em alguns tecidos moles. Dentre os principais danos atribuídos à incorporação de rádio estão os osteosarcomas, os carcinomas de crânio e a leucemia (ICRP, 1973; ROWLAND; STEHNEY; LUCAS, 1983; OLIVEIRA, 1998).

3.1.4 Tório

O tório possui seis isótopos radioativos naturais: ^{227}Th , ^{228}Th , ^{230}Th , ^{231}Th , ^{232}Th e ^{234}Th , provenientes dos decaimentos das séries radioativas do ^{235}U , ^{238}U e do ^{232}Th (FIRESTONE et al., 1996). Dentre os referidos isótopos, se destaca o ^{232}Th , por sua meia-vida longa ($1,41 \times 10^{10}$ anos) e emissões alfa associadas, com energias de 4,01 MeV (77,8%) e 3,95 MeV (22,1%), além do ^{230}Th , já que é o antecessor imediato do ^{226}Ra . No solo, o ^{232}Th apresenta uma concentração média de 9 mg.kg^{-1} e uma atividade específica média mundial aproximada de 40 Bq.kg^{-1} . Nas rochas, a variação registrada para o ^{232}Th é de 1,6 a 20 mg.kg^{-1} com média de $10,7 \text{ mg.kg}^{-1}$ na crosta terrestre, apresentando concentração cinco vezes superior à do urânio (EISENBUD; GESELL, 1997).

O tório apresenta um estado de oxidação único (+4), tornando assim, os seus compostos mais estáveis que os compostos de urânio. Como é o seu único estado de oxidação, não se faz necessário considerar as reações de oxirredução (GILL, 1996). Na natureza, o tório preferencialmente é encontrado adsorvido à fase sólida. Entretanto, caso o fluido contenha matéria orgânica e/ou sulfato em elevadas concentrações, uma parte do tório tende a permanecer na fase aquosa (EISENBUD; GESELL, 1997).

Quanto à solubilidade, os compostos de tório são bem menos solúveis do que o U e o K, exceto quando se encontram em meio ácido. A menor solubilidade implica diretamente na

mobilidade de seus compostos, que é mais difícil, ocorrendo principalmente através do vento e dos processos erosivos (SANTOS JÚNIOR, 2009; RIBEIRO; MANTOVANI; LOURO, 2013).

O tório pode ser encontrado em níveis traços com quantidades variadas em mais de 100 minerais, sendo a torianita (até 90% de ThO_2 e 33% de U_3O_8), a torita (até 80% de ThO_2 e 25% de U_3O_8) e a monazita, os minerais que apresentam o maior destaque. Destes minerais, os dois primeiros são os únicos onde o tório é o componente principal. No caso da monazita, que é um mineral de cério, o tório é considerado um componente secundário. Ainda assim, possui elevadas concentrações de tório em sua composição, podendo atingir 33% (GOMES, 2004).

O tório apresenta riscos biológicos para a saúde humana classificados em radiológicos e químicos. Quanto aos riscos radiológicos, são associados à radioatividade dos produtos de decaimento do ^{232}Th , em especial, o ^{228}Ra , que é seu descendente imediato. No corpo humano, por sua vez, os isótopos do tório e seus compostos tendem a estar concentrados nos rins, baço, fígado e medula óssea. Em termos químicos, possui toxicidade relativamente baixa, embora experiências de laboratório tenham constatado que, injeção intravenosa de compostos do elemento pode causar a morte (SANTOS JÚNIOR, 2009).

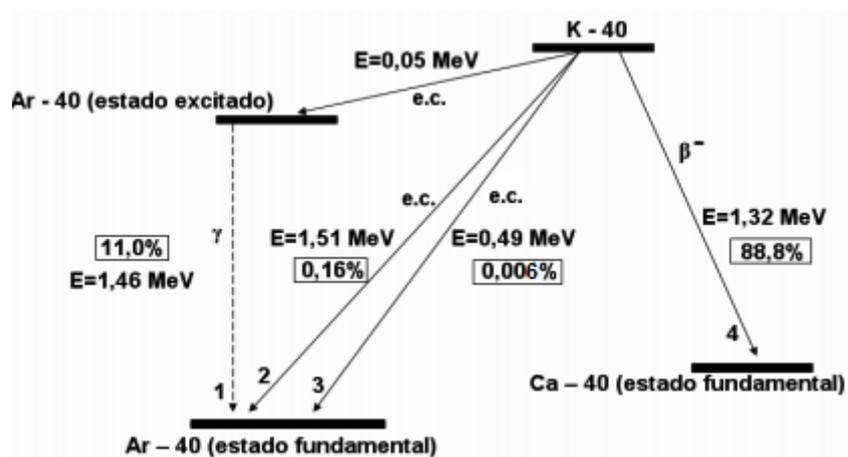
3.1.5 Potássio

O potássio é um elemento considerado essencial ao metabolismo humano, cuja distribuição no corpo humano ocorre de maneira uniforme, estando presente em todas as células vivas, de maneira principal, no tecido muscular. Sua quantidade no corpo é da ordem de 0,18% em adultos e de 0,2% em crianças (EISENBUD; GESELL, 1997; UNSCEAR, 2000).

O potássio é encontrado na natureza sob a forma de 3 isótopos: ^{39}K (93,088%), ^{40}K (0,0118%) e ^{41}K (6,9%), sendo o ^{40}K o único isótopo radioativo, com meia-vida de $1,28 \times 10^9$ anos e atividade específica de $2,6 \times 10^8 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Além disso, é considerado um dos elementos mais importantes, em termos de contribuição para a exposição dos seres vivos à radiação natural (13,63%) devido, principalmente, à homogeneidade de sua distribuição e emissões beta e gama de elevadas energias. No corpo humano, as doses equivalentes anuais correspondentes ao ^{40}K são de 165 e 185 $\mu\text{Sv.a}^{-1}$ em adultos e crianças, respectivamente (UNSCEAR, 2000; LIDE, 2005; BRADY; WEIL, 2013; LICÍNIO et al., 2013).

O ^{40}K é um radionuclídeo primordial, que, em seu processo de decaimento (conforme expresso na Figura 2), é um emissor de partículas beta, com energia aproximada de 1,3 MeV (88,8%), formando assim, o elemento isóbar ^{40}Ca . Em 11% dos casos, o ^{40}K irá decair para o ^{40}Ar , através do processo de captura eletrônica, onde há a emissão associada de radiação gama característica com energia de 1,461 MeV. Ainda sobre o decaimento $^{40}\text{K} - ^{40}\text{Ar}$, este também poderá ocorrer mediante captura eletrônica, ainda que em probabilidade diminuta. Em todos os casos de decaimento, os filhos são considerados estáveis (YVES GILLOT et al., 2007).

Figura 2 - Representação esquemática do decaimento do ^{40}K .



Fonte: YVES GILLOT et al. (2007), adaptado.

Na natureza, o potássio total é encontrado nas rochas em uma proporção variando entre 0,3 a 4,5%, com valor médio de 2,8% na crosta continental, estando concentrado preferencialmente nas rochas ígneas ácidas e em associação com minerais nos feldspatos potássicos (teor máximo de ^{40}K de 0,14%), como na microclina e ortoclásio ou nas micas, como a muscovita e a biotita.

Em termos de concentração, as mais elevadas são encontradas, em geral, nas rochas graníticas, cujo conteúdo de K_2O varia de 0,5% a 8%, tendo como principais minerais: a silvita (KCl), contendo 63% de K_2O ; a carnalita ($\text{KCl}\cdot\text{MgCl}_2\cdot 6\text{H}_2\text{O}$), com 17% de K_2O ; a cainita ($\text{KCl}\cdot\text{MgSO}_4\cdot 3\text{H}_2\text{O}$), contendo 19% de K_2O ; e langbeinita ($\text{K}_2\text{SO}_4\cdot 2\text{MgSO}_4$), contendo 23% de K_2O . Já nas rochas onde não há a ocorrência destes minerais em sua composição, as concentrações de potássio são menores, tais como nos basaltos e areias. (EISENBUD; GESELL, 1997; OLIVEIRA; SOUZA, 2001; FERREIRA, 2008; VASCONCELOS, 2010; BRADY; WEIL, 2013).

3.2 EQUILÍBRIO RADIOATIVO

Um processo de grande importância para a quantificação de radionuclídeos é o equilíbrio radioativo, já que a série radioativa natural a que eles pertencem apresenta núclídeos com diferentes propriedades físico-químicas e que apresentam grandes variações em seus tempos de meias-vidas físicas (SILVA, 2014).

A referida condição de equilíbrio é atingida quando, em um sistema fechado, um radioelemento, mediante o decaimento radioativo, forma um elemento instável (filho), cuja meia-vida física é muito menor que a do elemento precursor, chegando ao ponto que o decaimento do descendente seja tão rápido quanto a sua formação. Esse equilíbrio é classificado como equilíbrio radioativo secular. Neste caso, as atividades de todos os produtos de decaimento, ou de pelo menos parte deles, se igualam à atividade do elemento que encabeça a série. No entanto, essa igualdade de atividades registrada na condição de equilíbrio não necessariamente implica em concentrações iguais dos diferentes radionuclídeos presentes na amostra, haja vista que, os seus tempos de meias-vidas físicas são considerados no cálculo dos teores dos membros de cada série (SOUZA, 2006).

De maneira frequente, as séries de decaimento sofrem uma quebra proveniente dos processos geológicos, que geram a perda ou a adição, de maneira parcial ou completa, de radionuclídeos ao sistema, implicando assim, em mudanças nas proporções dos isótopos pais em relação aos seus filhos, causando o desequilíbrio radioativo. O processo de reestabelecimento do equilíbrio poderá levar dias, semanas, meses ou ainda milhões de anos para ocorrer, a depender dos tempos de meias-vidas dos radionuclídeos envolvidos, sendo necessário que o sistema volte a ser fechado e que não ocorram novos episódios que representem quebra desse equilíbrio (SOUZA, 2006; SANTOS JÚNIOR, 2009).

Dentre as séries radioativas naturais, a que apresenta a ocorrência do desequilíbrio radioativo com maior facilidade é a série do urânio, por conta do fracionamento deste elemento, que ocorre mediante os processos químicos de adsorção, absorção e coprecipitação, além do processo físico de recuo nuclear e do próprio escape do ^{222}Rn que, por ser um gás, facilmente escapa para a atmosfera, proveniente dos solos e fissuras presentes nas rochas. Em laboratório, para que o equilíbrio secular radioativo seja reestabelecido em amostras ambientais, a amostra deve ser acondicionada selada por um período de 10 meias-vidas do ^{222}Rn ($t_{1/2} = 3,8$ dias), ou aproximadamente 40 dias, para que ocorra a formação desse equilíbrio (SANTOS JÚNIOR, 2009).

Considerando a destacável variação de tempo ao qual o equilíbrio radioativo demora para que seja reestabelecido, a concentração do ^{238}U é estimada através do chamado "urânio equivalente", já que tal estimativa é baseada no pressuposto das condições de equilíbrio. De maneira semelhante ocorre com o tório, sendo chamado de "tório equivalente". O termo "equivalente" indica que a estimativa é baseada na suposição de que, o equilíbrio radioativo secular das séries de decaimento foi estabelecido (TECDOC-1363 IAEA, 2003).

3.3 MONITORAÇÃO RADIOMÉTRICA AMBIENTAL

A preocupação da comunidade científica aliada às autoridades civis constituídas em verificar os níveis de radioatividade no ambiente, tem se tornado crescente e constante, não só pelo fato de ser algo que existe na natureza desde a sua formação, através dos radionuclídeos primordiais e seus produtos de decaimento, que contribuem significativamente para a exposição externa gama recebida pelo homem (UNSCEAR, 2000), como também pelo incremento de seu uso em atividades antrópicas com alto grau de especificidade ou ainda pela ocorrência de algumas tragédias de grandes proporções nas últimas décadas, que implicam no aumento dos níveis globais de radiação e, conseqüentemente, na elevação dos níveis de exposição dos seres humanos à radioatividade.

Por tais razões, se faz necessária à realização de estudos detalhados que visem o monitoramento completo tanto dos níveis de radioatividade quanto dos radionuclídeos que a originam, no ambiente de convívio humano, seja ele não antropizado e que mantém as suas características naturais, ou então, um ambiente fortemente marcado pela ação do homem e que tenha a radioatividade inserida na rotina de suas atividades. Investigações como estas, propiciam que, no caso dos ambientes naturais, seja possível verificar se os níveis de radioatividade natural registrados podem gerar algum risco às populações residentes e, no caso dos ambientes antrópicos, evitar a ocorrência de contaminação em grandes proporções.

A Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), dentro de seu arcabouço normativo em vigor (Norma CNEN-NN-3.01), que estabelece as diretrizes básicas de proteção radiológica, define a Monitoração Ambiental, em termos radiológicos, como *"o processo planejado e sistemático de realizar medições de campos de radiação, de radioatividade e de outros parâmetros no meio ambiente, incluindo a interpretação dos resultados dessas medições, com o objetivo de caracterizar, avaliar ou controlar a exposição do indivíduo do público, em especial do grupo crítico, resultante de uma prática"*.

A monitoração radiométrica pode envolver a verificação de áreas ou a monitoração direta dos indivíduos. No caso de monitoração de áreas, são utilizados: detectores de radiação sejam eles fixos (semicondutores, cintiladores, câmaras de ionização, detectores a gás, contadores proporcionais), mediante a avaliação posterior de amostras ambientais coletadas em áreas de interesse, ou portáteis que permitem a realização das aquisições das medidas nos locais desejados - as chamadas medidas *in situ* - como os contadores do tipo Geiger-Mueller, os detectores gama do tipo discriminador e a aerocintilometria, onde detectores de radiação são acoplados a aeronaves de pequeno porte, realizando uma varredura.

Em termos de monitoração dos indivíduos, os instrumentos mais utilizados na monitoração radiométrica são os dosímetros, em suas variadas formas (filmes dosimétricos, canetas dosimétricas, TLD's e similares), além da realização de exames periódicos utilizando medidas de amostras biológicas (urina, sangue e outros) e medidas diretas (corpo inteiro, órgãos e tecidos) (CASTRO, 2005; XAVIER; MORO; HEILBRON, 2006; SILVA, 2014).

Detectores fixos, como o HPGe, presente em Sistemas de Espectrometria Gama; Detectores portáteis, como o do tipo discriminador gama; Dosímetros termoluminescentes; Detectores de trilha nuclear em estado sólido e Aerogamaespectrometria foram utilizados na monitoração radiométrica de áreas e pessoas no nordeste brasileiro, estando destacavelmente descritos na literatura, que apresenta estudos cujo objetivo central foi avaliar os níveis de radioatividade natural em localidades dos Estados do Rio Grande do Norte, Paraíba e Pernambuco (ADUSUMILI & DE CASTRO, 1990; MALANCA et al., 1996; MALANCA; GADOLFI, 1996; MALANCA; GADOLFI, 1997; SILVA et al., 2010; SOUZA et al., 2012; SILVA, 2014; BEZERRA, 2015).

3.3.1 Dosimetria Ambiental e Índices de Risco da Radiação Gama

Quando se aborda o monitoramento radiométrico de radionuclídeos primordiais, são exemplos alguns estudos, como os realizados por MALANCA *et al.*, 1996; MOHANTY, *et al.*, 2004; OTANSEV et al., 2012; ALNOUR et al., 2014; RANGASWAMY et al., 2016, com o intuito de calcular a dosimetria de radionuclídeos presentes em matrizes ambientais, considerando os principais emissores gama das séries dos radionuclídeos naturais. As rochas são objeto constante de monitoração radiométrica, devido aos inúmeros afloramentos existentes.

Nestes estudos, é frequentemente realizado o cálculo das concentrações de atividades específicas de tais radionuclídeos, que é considerado o "dado base" das análises radiométricas

em áreas com elevada radiação de fundo. A partir dele, são obtidos outros resultados importantes para a realização de tais análises, como as taxas de doses absorvida (\dot{D}) e equivalente efetiva ambiental (H), além do rádio equivalente ($R_{a_{eq}}$). Aliado a isso, outros índices são calculados e trazem mais elementos que permitem a avaliação dos níveis de radioatividade existentes em matrizes ambientais. O cálculo dos índices de risco externo e interno (H_{ex} e H_{in}) possibilita que, além da própria radiometria do local, sejam estimados e preditos, por exemplo, os riscos radiológicos associados à utilização de matrizes ambientais, como no caso das rochas e solos, como componente em materiais de construção, já que são fortemente utilizadas na construção civil, o que pode representar risco às pessoas diretamente expostas.

A taxa de dose absorvida no ar a 1 m da superfície do solo é uma das grandezas mais estudadas para avaliar a radiação gama *outdoor* proveniente dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , cujos valores mundiais variam entre 10 a 200 $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$. De acordo com a UNSCEAR (2000), para que seja realizado o seu cálculo, são utilizados fatores para a conversão de $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ para $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$, correspondentes a 0,462 para o ^{238}U , 0,604 para o ^{232}Th , e de 0,0417 para o ^{40}K , que representam um fator combinado de dose.

Ainda segundo a UNSCEAR (2000), a estimativa da dose efetiva anual ambiental, pode ser calculada considerando o coeficiente de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva, além do fator de ocupação do indivíduo, seja ele *indoor* ou *outdoor*. Tais parâmetros apresentam variação em seu valor médio a depender da idade da população e do clima no local considerado. Na UNSCEAR (1993), indica-se o uso de $0,7 \text{ Sv}\cdot\text{Gy}^{-1}$ como o coeficiente de conversão de dose absorvida no ar para dose efetiva recebida por adultos, além do fator de ocupação, que é o período de tempo onde uma pessoa permanece no ambiente.

Em linhas gerais, para ambientes externos - os chamados *outdoor* - o fator de ocupação recomendado é de 0,2, enquanto que, considerando os ambientes *indoor*, o fator passa a ser 0,8. Entretanto, é importante observar que, em caso de indivíduos cuja residência e trabalho estejam em localidades construídas sobre ocorrências anômalas de radionuclídeos naturais, o fator de ocupação poderá ser considerado igual a 1, representando assim, uma ocupação total, já que as pessoas estariam expostas 24 horas por dia, a exceção dos habitantes que estudem, trabalhem ou realizem atividades fora da área com tais características.

Nas últimas décadas, em vários locais do planeta, estudos tem indicado um valor médio de dose absorvida no ar de $84 \text{ nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ para ambientes *indoor* e de $59 \text{ nGy}\cdot\text{h}^{-1}$ em ambientes *outdoor*, conforme expresso pela UNSCEAR (2000). Considerando tais

informações, o cálculo da dose efetiva anual ambiental pode ser realizado com base nos parâmetros descritos.

Ambientes *Indoor*: $84 \text{ nGy h}^{-1} \times 8760 \text{ h} \times 0,8 \times 0,7 \text{ Sv.Gy}^{-1} = 0,41 \text{ mSv}$;

Ambientes *Outdoor*: $59 \text{ nGy h}^{-1} \times 8760 \text{ h} \times 0,2 \times 0,7 \text{ Sv.Gy}^{-1} = 0,07 \text{ mSv}$.

Diante disso, a média mundial da dose anual efetiva decorrente dos radionuclídeos primordiais é de 0,48 mSv, apresentando uma variação nos países entre 0,3 a 0,6 mSv (UNSCEAR, 2000).

A dosimetria radiométrica externa ambiental também utiliza outro parâmetro importante: a atividade equivalente do rádio, também conhecida de rádio equivalente (R_{aeq}), utilizada para estimar a atividade devida a contribuição dos principais emissores gama das séries do ^{238}U , do ^{232}Th e o ^{40}K . A realização de tal cálculo, entretanto, necessita considerar a característica não uniforme de distribuição dos radionuclídeos no ambiente. Tal parâmetro é definido como sendo a concentração da atividade de um radionuclídeo equivalente a 370 Bq.kg^{-1} de ^{226}Ra de produzir a mesma taxa de dose gama (1,0 mSv/indivíduo) que 259 Bq.kg^{-1} de ^{232}Th e 4.810 Bq.kg^{-1} de ^{40}K (LU & ZHANG, 2008; TUFAIL, 2012). Observa-se a utilização do R_{aeq} na certificação, em âmbito mundial, de materiais de construção para exportação, constituindo-se assim, numa forma rápida e alternativa de estimar os níveis de radioatividade natural presentes neles.

Em termos dosimétricos, outros parâmetros, definidos por Beretka e Mathew em 1985 e fortemente utilizados pela comunidade acadêmica, também são considerados importantes para a avaliação dos níveis de radioatividade existentes em matrizes ambientais, bem como, dos riscos radiológicos associados à radiação externa e interna na construção civil.

O índice de risco externo (*External Hazard Index - H_{ex}*) é a avaliação do risco devido à exposição externa à radiação gama dos radionuclídeos naturais presentes nos materiais de construção das habitações. Seu valor considera a estimativa de que seu máximo valor permitido equivale ao valor limite do R_{aeq} (370 Bq kg^{-1}) ou inferior a unidade ($H_{ex} \leq 1$), o que sugere, para o caso de valores inferiores ao referido limite, que o risco de radiação seja considerado insignificante (VEIGA et al., 2006; RANGASWAMY et al., 2016).

Já o índice de risco interno (*Internal Hazard Index - H_{in}*) busca avaliar os níveis de exposição interna, atribuídos ao radônio e seus produtos de decaimento, e que causam danos relevantes ao sistema respiratório. O valor considerado como limite para indicar que um dado

material possa ser utilizado com segurança na construção de moradias é igual ou inferior a unidade ($H_{in} \leq 1$) (BERETKA; MATHEW, 1985; GAAFAR et al., 2016).

3.4 ESPECTROMETRIA GAMA

A detecção e medida das radiações possuem grande importância, sendo aplicáveis tanto para os setores cujas aplicações nucleares são ferramenta de desenvolvimento quanto para a área de Proteção Radiológica, onde se busca obter medidas precisas que permitam avaliar o grau de risco envolvido em atividades com exposições à radiação ionizante, seja de origem natural ou antrópica. Os equipamentos responsáveis por comprovar a existência da radioatividade, bem como a determinação de sua respectiva quantidade, identificação dos radionuclídeos, energia e tipo de emissão associados são os chamados sistemas de detecção ou, simplesmente, detectores. É nos detectores que a radiação existente interage, sendo convertida em sinais elétricos, através de instrumentos eletrônicos associados, permitindo assim, a sua análise com maior nível de detalhamento (KHAN et al., 2014).

Dentre as técnicas mais utilizadas para a determinação de radionuclídeos naturais em níveis baixos, estão a cintilação líquida, espectrometria de massa e espectrometria alfa. Estes, caracterizados por seus custos elevados e processos radioquímicos convencionais de preparação das amostras, que são bastante trabalhosos e com elevado custo.

Também está a espectrometria gama, técnica amplamente utilizada na identificação e/ou quantificação de radionuclídeos que estejam presentes em um dado material, mediante a análise do espectro energético derivado da interação entre os raios gama provenientes da amostra e o detector. A técnica, em contraponto aos métodos anteriormente mencionados, dispensa a adoção de processos de preparação amostral supracitados, sendo considerada bastante versátil e que tem por vantagens principais: a capacidade de serem realizadas análises rápidas, não destrutivas e multielementares, de onde podem ser obtidas grande quantidade de informações referentes à radionuclídeos que estejam presentes num dado material, em uma única medição (SANTOS JÚNIOR et al., 2009).

Quanto às possibilidades de aplicação, a Espectrometria Gama pode ser empregada na avaliação radiométrica de amostras provenientes das mais diversas atividades, tais como, o controle de efluentes em instalações, aplicações médicas, além de análises de alimentos e de matérias-primas, com o objetivo de atender exigências legais. Aliado a isso, a técnica é recomendada para a determinação qualitativa e quantitativa de radionuclídeos existentes em

amostras ambientais, biológicas e geológicas, onde, normalmente, a radioatividade normalmente apresenta níveis baixos (CASTRO, 2008).

Em análises por espectrometria gama, para que se garanta o bom desempenho dos detectores e os resultados obtidos tenham a sua confiabilidade elevada, alguns parâmetros devem ser evidenciados: a calibração do sistema de medidas; a eficiência de contagem por energia do fóton; o limite de detecção, que deve ser baixo; alta resolução; a existência de um sistema que informe a área líquida do fotopico; um arranjo experimental onde seja possível que os resultados experimentais sejam validados, através de padrões certificados; a utilização de padrões que possuam características semelhantes às amostras analisadas, tais como a densidade e o tipo, diminuindo os efeitos da auto absorção; padronização das massas das amostras; dos padrões e do tempo de aquisição das medidas, que deve ser suficiente para garantir que haja uma boa estatística de contagem, diminuindo ao máximo possível, o erro nos resultados a serem obtidos (SIVERS *et al.*, 2014).

A depender do detector a ser escolhido para dada análise, é possível obter resultados que apresentem maior precisão e exatidão. Neste aspecto, devem ser consideradas algumas características que lhe são inerentes, de maneira a justificar sua escolha, como a resolução em energia, a eficiência de detecção, cujas definições serão melhor detalhadas a seguir, e o tempo morto, que corresponde ao período de tempo necessário para que um pulso seja devidamente processado pelo sistema de medidas (KORUN *et al.*, 2014).

Dentre as categorias de detectores importantes na espectrometria gama estão os cintiladores, cuja figura principal é o detector de iodeto de sódio ativado com tálio - NaI(Tl) - e os semicondutores, onde o detector de germânio hiperpuro, o HPGe, é fortemente utilizado na avaliação de radioatividade em amostras ambientais, por apresentar excelente resolução em energia e linearidade de resposta em uma faixa de energia ampla (CRESSWELL; SANDERSON, 2012).

Os semicondutores são sólidos considerados isolantes perfeitos quando, teoricamente, se encontram a uma temperatura de 0K (-273,15°C), mas que se transformam em condutores, quando ocorre a elevação da temperatura. Este conceito de condução nos semicondutores deve ser considerado, já que, nestes materiais, a condução relaciona-se à energia de excitação dos elétrons, ou seja, quanto maior a temperatura, maior é a energia dos elétrons para superar o *gap* de energia e, com isso, mais elétrons são promovidos da banda de valência (cuja energia é mais baixa) para a banda de condução. Quando um elétron passa para a banda de condução, em seu lugar fica uma ausência de elétron, que é chamada de lacuna, vacância ou *hole* (buraco), gerando assim, a formação de um par 'elétron-lacuna' ou 'elétron-buraco'. Esta

mudança de banda energética ocorre quando a radiação interage com o material semiconductor, sob a influência de um campo elétrico, ocasionando desta forma, a formação de um pulso que pode ser detectado (MAFRA, 1973; CHARFUELÁN, 2014).

Em linhas gerais, a principal diferença para que os condutores sólidos sejam classificados é o chamado “*gap* de energia”, que é definido como sendo a energia necessária para a transição da banda de valência para a banda de condução. No caso do germânio, por exemplo, o “*gap*” é relativamente pequeno. Por isso, a probabilidade de haver excitação térmica, gerando ruído no detector, é grande. Para que ocorra a redução deste efeito, deve-se operar o detector a temperaturas criogênicas, geralmente atingidas mediante a utilização de nitrogênio líquido, cuja temperatura de trabalho é de 77 K ou - 196,15°C, aspecto este, considerado uma limitação da técnica. (KNOLL, 1989; CANBERRA, 2003).

Os detectores semicondutores, por sua vez, são caracterizados por possuir uma eficiência de detecção menor, quando comparado aos detectores cintiladores, principalmente devido ao fato do germânio apresentar um baixo número atômico, o que proporciona que a maioria das interações registradas não sejam absorvidas por completo. Entretanto, os detectores semicondutores apresentam uma resolução em energia muito melhor do que os detectores cintiladores, o que permite a produção de fotopicos estreitos e altos - destacáveis do ruído estatístico do espectro contínuo - justificando assim, a utilização frequente de tais detectores na detecção de fontes cuja atividade é baixa e as energias sejam discretas e superpostas ao longo do espectro, como no caso das amostras de origem ambiental (KNOLL, 2010).

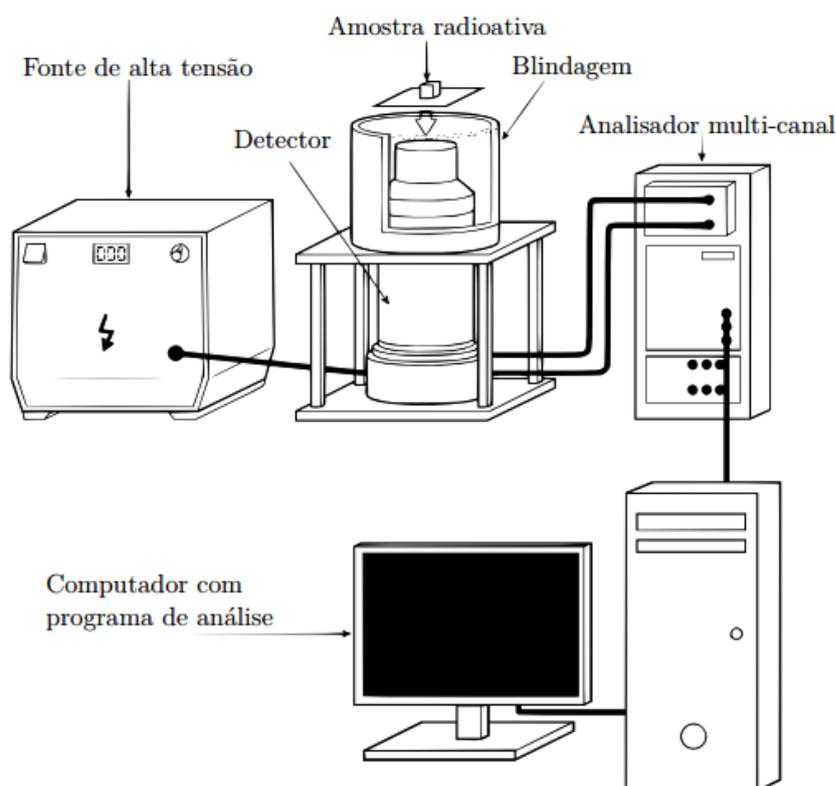
A preferência pela utilização dos detectores semicondutores na realização de pesquisas que determinem a presença de radionuclídeos em amostras ambientais foi confirmada em estudo realizado por Santos Júnior e colaboradores (2009), onde, ao comparar os principais tipos de detectores utilizados na espectrometria gama (HPGe *versus* NaI(Tl)), concluiu-se que o detector do tipo HPGe, é considerado o mais indicado na realização de tais pesquisas.

Nos Sistemas de Espectrometria Gama onde são utilizados detectores semicondutores, conforme expresso na Figura 3, os fótons originados do processo de decaimento de algum radionuclídeo presente na amostra a ser analisada, ou então de uma fonte radioativa, irão interagir com o cristal semiconductor presente no detector, formando pares elétron-buraco. Uma fonte de alta tensão, utilizada através do pré-amplificador acoplado ao detector com o objetivo de se gerar um campo elétrico entre os terminais existentes, permite que ocorra a coleta da carga elétrica produzida e, conseqüentemente, haja a formação de um pulso, com amplitude que é diretamente dependente do tipo de interação (efeito fotoelétrico,

espalhamento Compton ou produção de pares) e da energia do fóton incidente. A referida carga elétrica produzida mediante a inserção da fonte de alta tensão é proporcional à energia da radiação incidente liberada na interação (ARINE, 2017).

Os pulsos gerados são amplificados, enviados a um conversor que, além de transformá-los de analógicos em digitais, irá distribuí-los em função das suas amplitudes nos canais do analisador multicanal (MCA, do inglês *multichannel analyser*), formando assim, um histograma que correlaciona o número de fótons absorvidos em função de suas respectivas energias (geralmente, em keV). Como resultado final, através de programas computacionais como o Genie 2000[®], obtém-se um espectro gama da amostra em análise, onde podem ser encontrados vários picos que correspondem aos fótons nos quais houve a deposição de toda a sua energia no interior do cristal, montados sobre um contínuo, cuja origem provém das interações com perda parcial de energia (FERREIRA, 2012).

Figura 3 - Sistema de Espectrometria Gama com Detector Semicondutor.



Fonte: ARINE, 2017.

Alguns destes fótons apresentam no espectro, energias muito próximas umas das outras. Daí a necessidade de que se tenha um sistema de medidas capaz de promover a

separação e a diferenciação deles, para a sua qualificação. A esta capacidade dá-se o nome de resolução em energia, considerado o parâmetro mais importante na definição da função resposta do detector, sendo calculado, conforme a Equação 1, em relação à medida da largura do fotopico à metade da altura máxima (FWHM: *Full Width at Half Maximum*) (KNOLL, 2000). Neste aspecto, um sistema de espectrometria gama dotado de um detector HPGe apresenta destacável superioridade, quando comparado a detectores que utilizam cristais de NaI(Tl), por exemplo (SILVA, 2018).

$$R = \frac{\text{FWHM}}{E} \quad (1)$$

Onde: R, representa a resolução em energia; FWHM, a medida da largura do fotopico à metade da altura máxima e E, a energia média do fotopico central.

É importante evidenciar que, para a quantificação de radionuclídeos mediante a utilização de um detector, deve-se conhecer a eficiência de detecção para o fotopico de interesse, que é calculada conforme a Equação 2 (MADUAR, 2010) e representa a capacidade que o detector tem de absorver completamente a energia de toda a radiação gama que interaja em seu volume ativo, apresentando considerável dependência da geometria de contagem determinada, bem como da energia do raio gama do radionuclídeo em análise (MADUAR, 2010).

$$\varepsilon_E = \frac{N_{Ei}}{A_{Eip} \times t \times \gamma_p \times V_p} \quad (2)$$

Onde: ε_E corresponde a eficiência de contagem; N_{Ei} , a área líquida de cada fotopico correspondente ao raio gama emitido, definida experimentalmente em contagens; A_{Eip} , a atividade específica gama corrigida do padrão utilizado; t, o tempo de contagem (em segundos); γ_p , a probabilidade de emissão gama do padrão, para a energia em questão e V_p , o volume do padrão (mL).

A calibração da eficiência de um detector de germânio é realizada normalmente através do método relativo onde, experimentalmente, utilizam-se fontes de radiação

produzidas a partir da dopagem de elementos radioativos com atividades conhecidas, afim de se obter a eficiência. Estas fontes, apresentam condição geométrica e tipológica exatamente iguais às amostras analisadas. Uma vez que os valores das eficiências de detecção para cada energia de raio gama emitido pela fonte de calibração são obtidos, é possível, através do ajuste de uma função, obter eficiências para outras energias não contempladas pela fonte de calibração (KERUR *et al.*, 2012).

Uma etapa importante nas medidas de radionuclídeos refere-se à escolha das transições gama, já que cada fóton de raio gama emitido apresenta uma energia discreta, característica e que propicia a identificação de cada um dos radioelementos que existam no material em análise, sendo que estes elementos poderão, em alguns casos, ser determinados por mais de um pico de energia (CASTRO, 2008).

Na espectrometria gama, a determinação de radionuclídeos como o U, Ra e Th é realizada através da medida indireta dos raios gama emitidos por seus produtos de decaimento, considerando o estabelecimento do equilíbrio radioativo secular. A condição fundamental para isso é que tais emissões apresentem energia e intensidade capazes de serem detectadas.

No caso do U, por exemplo, se faz necessária a medida do produto de decaimento, já que o ^{238}U não possui atividade gama com intensidade suficiente para análises de rotina, já que é formado um pico de baixa intensidade ($E_\gamma = 49,55 \text{ keV}$; $\gamma\% = 0,064\%$). Na literatura, difunde-se o uso dos fotopicos de 63 e 93 keV do ^{234}Th para a determinação da atividade do ^{238}U . Apesar destas transições gama estarem presentes numa região de elevado "background Compton" e sujeita a interferências de raios-X, auto-absorção gama e efeitos secundários, ainda assim, são bastante utilizadas, por apresentarem um período de tempo considerado curto para o restabelecimento do equilíbrio secular entre eles. Dentre estas energias, a que apresenta menor interferência é a de 63 keV (AMARAL, 1987; PAPACHRISTODOULOU *et al.*, 2003; SANTOS JÚNIOR, 2005; KASTE; BOSTICK; HEIMSATH, 2006).

O ^{226}Ra , por sua vez, pode ser medido através dos fotopicos de 295 e 352 keV do ^{214}Pb , do fotopico de 609 keV do ^{214}Bi , assim como do fotopico de aproximadamente 1.120 keV do ^{214}Bi . A determinação do ^{232}Th , ocorre mediante as energias do ^{228}Ac (338,33 keV; 911,07 keV, e 968,90 keV). O ^{40}K , no entanto, é o único determinado de maneira direta, pela sua energia gama própria de 1.460,8 keV (MALCZEWSKI, *et al.*, 2004).

3.5 ROCHAS, PETROLOGIA E ANÁLISE PETROGRÁFICA

As rochas são aglomerados de um ou mais minerais, cujos processos que as originam apresentam variações, influenciadas principalmente pela sua localização no Planeta Terra, bem como pelos valores de pressão (P), temperatura (T) e chave de composição (X) associados. Através do estudo das rochas, são definidas suas respectivas características químicas, físicas e geométricas, tornando possível a compreensão, pelo homem, dos processos e ambientes que as formaram (MENEZES, 1999).

De acordo com Winge et al (2019), dentro da Geologia destaca-se a petrologia, cujo objetivo é estudar as rochas em geral – sejam elas ígneas, sedimentares ou metamórficas – buscando definir a sua caracterização, constituição, origem e evolução. É um ramo que abrange a descrição, classificação e sistematização da rocha, utilizando-se para isso de uma quantidade expressiva de ferramentas, como:

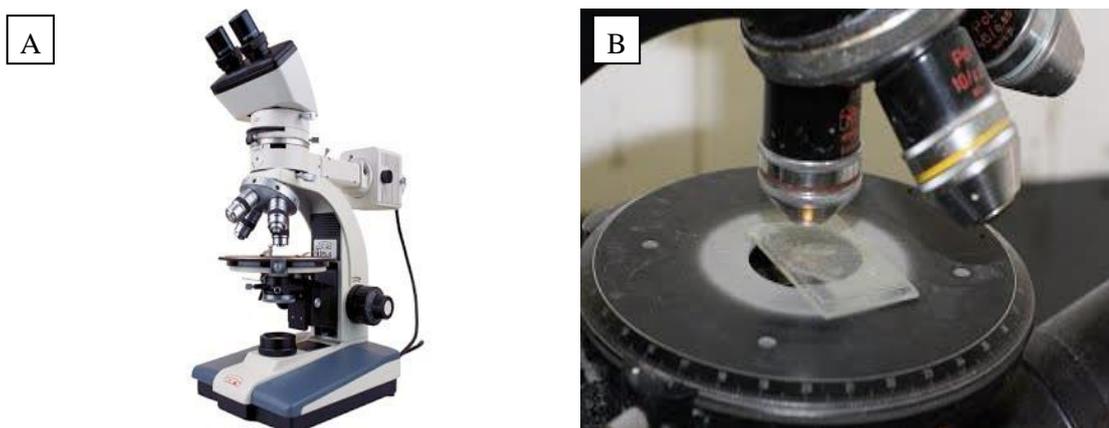
- Geoquímica ou litogeoquímica, que considera a composição química total ou das paragéneses minerais definindo-se assinaturas geoquímicas que caracterizam ambientes geológicos de formação e/ou transformação da rocha;
- As propriedades físicas, incluindo aspectos como magnetismo remanescente;
- A química isotópica, possibilitando que ambientes de origem das rochas sejam definidos, além da geocronologia;
- A petrografia, que é um estudo macro e microscópico das rochas e seus minerais, definindo as suas texturas e estruturas, a mineralogia e classificação.

Em meados do século XIX, Henry Sorby reconheceu a petrografia microscópica como ferramenta para estudo de rochas sedimentares (PETTIJONH et al. 1973). Essa ferramenta passou a ter considerável importância como área de pesquisa, dentro da sedimentologia, a partir do direcionamento da pesquisa para a indústria de exploração do petróleo, com os estudos detalhados dos espaços porosos capazes de armazenar hidrocarbonetos (VIEIRA, 1991).

O instrumento utilizado na petrografia e mineralogia ótica é o microscópio petrográfico – um tipo de microscópio ótico, conforme expresso na Figura 4A, cuja finalidade é a identificação de rochas ou minerais em lâminas delgadas (Figura 4B), que expressam o resultado da preparação laboratorial de uma amostra de rocha, mineral ou solo, para observação com microscópio petrográfico com luz natural ou polarizada. Através das lâminas

delgadas é possível identificar a composição mineralógica, tamanho e formato dos minerais, presença de deformação, de microfósseis, entre outros, visando a compreensão do ambiente de formação da rocha em estudo (GOOGLE SITES, 2019).

Figura 4 – Microscópio de luz transmitida (A) utilizado para observação de Rocha em Lâmina delgada fina (B).



Fonte: GOOGLE SITES – MINERAIS E ROCHAS MAGMÁTICAS. **Petrografia Microscópica.** Disponível em: <<https://sites.google.com/site/mundodasrochas/curiosidades>>. Acesso em: 02 de julho de 2019.

Inúmeras outras áreas de investigação, utilizando microscopia ótica, surgiram ao longo das últimas décadas. No estudo das rochas, a petrografia microscópica convencional, auxiliada por outras técnicas, a exemplo da microscopia eletrônica de varredura (MEV) e difratometria de raios-X (DRX), tem constituído a base para a identificação de seus constituintes (ANJOS; DE ROS, 1990).

3.6 DIFRAÇÃO DE RAIOS X

Passados os primeiros anos do século XX, mais especificamente próximo a 1912, Max Von Laue tornou possível que, através da utilização de uma estrutura cristalina como uma rede de difração tridimensional, fosse realizada a difração de raios X. Dois de seus alunos, Walter Friedrich e Paul Knipping, foram os responsáveis pelas primeiras experiências relacionadas a tal feito. Na sequência, William Henry Bragg e seu filho William Lawrence Bragg demonstraram a relação considerada fundamental no estudo de estruturas cristalinas mediante a difração de raios X, cuja descrição ocorrerá adiante, conhecida como a Lei de Bragg (PICCOLI et al., 2009).

A difração de raios X corresponde ao fenômeno no qual um feixe incidente de raios X interage com os elétrons dos átomos que compõem um dado material, sendo detectados α

posteriori os fótons difratados, que constituem o feixe difratado. Os raios X, quando atingem um material, podem, sem que haja perda de energia pelos elétrons dos átomos, ser espalhados elasticamente - o chamado espalhamento coerente. O fóton de raios X modifica a sua trajetória, após colidir com o elétron da amostra, permanecendo, no entanto, com o comprimento de onda da radiação incidente. Desta forma, cada elétron acaba atuando, de forma instantânea, como um novo centro emissor de raios X (JENKINS; SNYDER, 1996).

Caso o arranjo dos átomos que geram tal espalhamento esteja ocorrendo de forma sistemática, tal qual numa estrutura cristalina, é possível observar, entre os espalhamentos, que as relações de fase tornam-se periódicas, observando assim, em vários ângulos de incidência do feixe, o fenômeno de difração dos raios X. Para isso, é necessário que o comprimento de onda (λ) seja da ordem de grandeza das distâncias entre os centros espalhadores (d), como resultado de uma interferência construtiva e ocorrendo nas direções de espalhamento que satisfazem a Lei de Bragg, conforme descrito na Figura 5. A Lei de Bragg é expressa pela Equação 3, a seguir.

$$n\lambda = 2d \times \text{sen}\theta \quad (3)$$

onde:

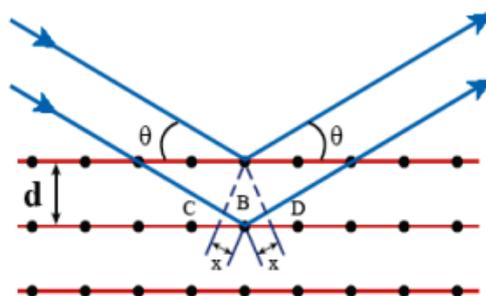
λ , corresponde ao comprimento de onda da radiação monocromática incidente,

n , é um número inteiro que corresponde à ordem de difração,

d , é o espaçamento interplanar para o conjunto de planos hkl (índice de Miller) da estrutura cristalina, que se deseja medir

θ , é o ângulo de incidência dos raios X (medido entre o feixe incidente e os planos cristalinos), também chamado de ângulo de difração.

Figura 5 - Fenômeno de Difração de Raios X, conforme a Lei de Bragg.



Fonte: ANTONIASSI, 2010.

Os ângulos θ dos raios X refletidos possuem relação com as dimensões das celas unitárias e as orientações dos planos interatômicos hkl específicos do material cristalino. Por consequência, dois minerais que apresentem dimensões de célula unitária iguais produzem o mesmo padrão de reflexão de raios X. Por outro lado, as intensidades relativas das várias reflexões hkl de um cristal, dependem, dentre outros fatores, do número de elétrons no átomo. Aliado a isso, os átomos são distribuídos de tal maneira no espaço, que vários planos de uma estrutura cristalina possuem densidades de átomos ou elétrons diferentes, o que faz as intensidades difratadas serem consequentemente distintas para os diversos planos cristalinos. Desta forma, o padrão de difração que caracteriza cada composto cristalino é único, o que permite a sua identificação através das posições angulares e intensidades relativas dos feixes difratados (ANTONIASSI, 2010).

Os instrumentos onde acontece a medida da difração de raios X são os difratômetros, e neles, as análises podem ser realizadas utilizando o método do pó ou através de câmaras acopladas de monocristais, onde a utilização destas últimas acontece em casos especiais, como por exemplo, quando a disponibilidade de amostra para análise é muito pequena ou na realização de estudos com elevado nível de especificidade buscando determinar parâmetros cristalográficos (JENKINS, 1989).

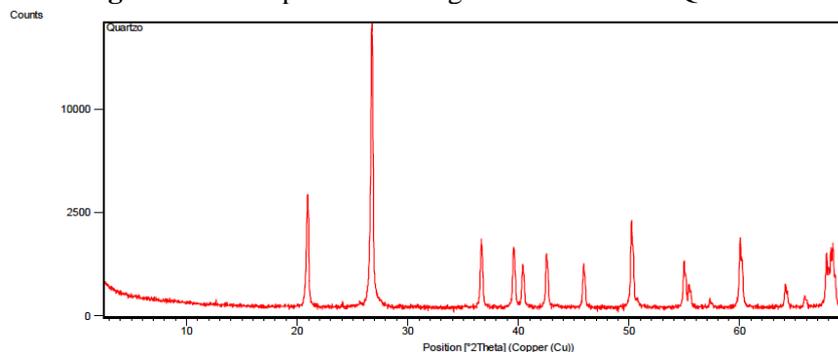
No caso das câmaras de pó, é focalizado um feixe de raios X estreito sobre a amostra em análise, posicionada no centro de um dispositivo com formato cilíndrico. Os feixes difratados irão sensibilizar um filme fotográfico colocado no interior da câmara ou ainda podem ter seu registro realizado por técnicas difratométricas, que se valem de um contador (detector) associado a um sistema eletrônico para aquisição de medidas (FORMOSO, 1984).

Quanto ao sistema de detecção, sua função é converter, em pulsos de voltagem, os fótons individuais de raios X identificados pelo equipamento de contagem. Em geral, dentre os tipos de detectores existentes, são utilizados em difratômetros convencionais, os contadores de cintilação (pontual) ou proporcional selado (Xe) (ANTONIASSI, 2010).

Como resultado, os feixes difratados detectados normalmente são expressos em picos destacados do *background*, cujo registro é feito em um gráfico, conforme ilustrado na Figura 6, que relaciona intensidade *versus* ângulo 2θ (ou d), e constitui o padrão difratométrico, ou simplesmente, o difratograma da amostra em análise, que é único para cada composto, tal qual, por exemplo, a biometria é para cada ser humano. Cada pico presente neste gráfico expressa, de acordo com Jenkins (1989), a reflexão dos raios X nos planos do retículo cristalino das fases que compõem a amostra, cada qual com seus respectivos índices de Miller hkl (reflexões hkl), e que apresentam uma determinada altura (intensidade), área, posição

angular e com largura e caudas que, à medida que ficam mais distantes da posição correspondente à altura máxima do pico, decaem de maneira gradual.

Figura 6 - Exemplo de Difratoograma referente ao Quartzo.



Fonte: ANTONIASSI, 2010

A análise qualitativa de uma amostra é realizada através da comparação de seu respectivo difratograma com padrões de referência existentes em bancos de dados de DRX mantidos constantemente atualizados pelo Centro Internacional de Dados de Difração - ICDD (do acrônimo inglês *International Centre for Diffraction Data*), cuja sede está nos Estados Unidos, além de outros órgãos colaboradores. Tais bancos de dados apresentam as informações cristalográficas consideradas necessárias para a caracterização mineralógica, como por exemplo, as distâncias interplanares (d) e as intensidades difratadas normalizadas (relativas a 100%) para os vários planos hkl que difratam construtivamente os raios X (ICDD, 2018).

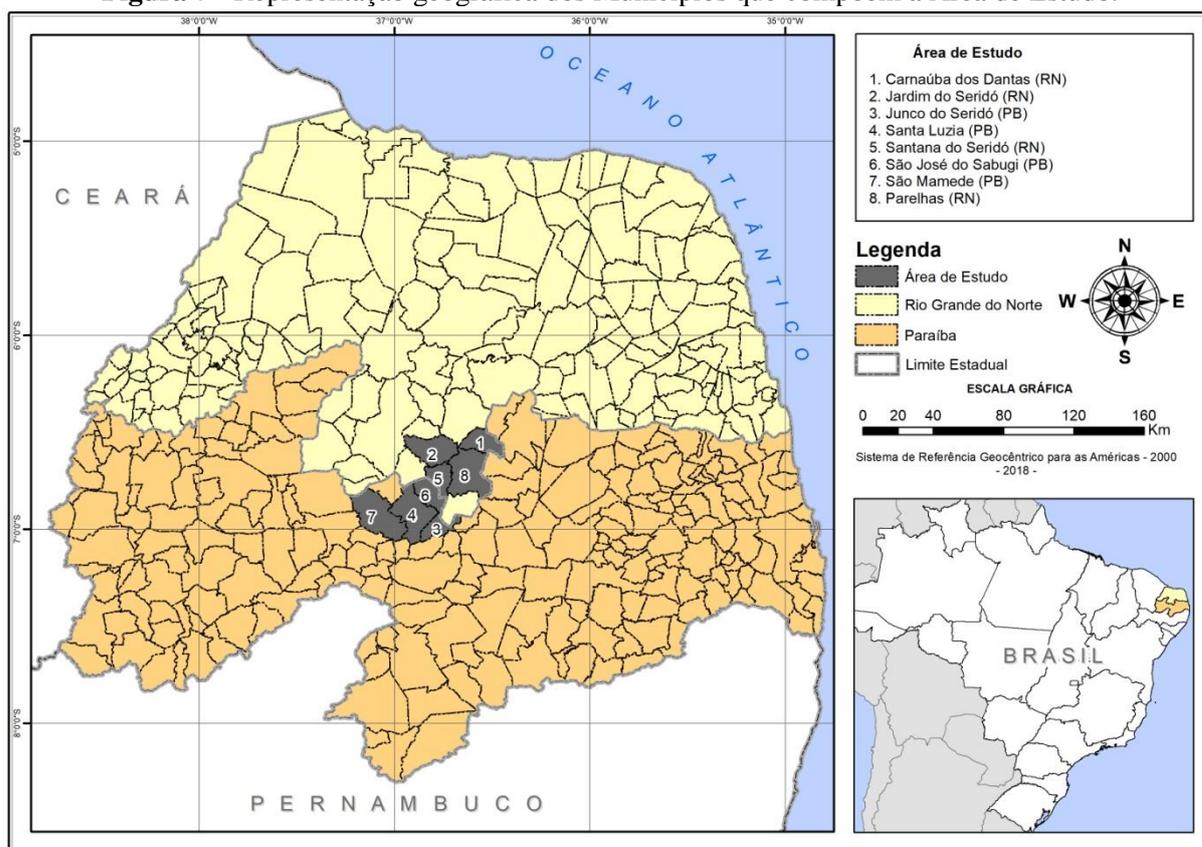
4 MATERIAL E MÉTODOS

4.1 CARACTERIZAÇÃO DA ÁREA DE ESTUDO

A região de estudo abrange 8 (oito) municípios nos Estados do Rio Grande do Norte e da Paraíba, numa área territorial aproximada de 2.679,5 km², conforme expresso na Figura 7 e discriminado na Tabela 4.

No contexto das divisões regionais, os referidos municípios estão inseridos nas Mesorregiões Central Potiguar e Borborema e nas Microrregiões do Seridó Oriental Potiguar e Seridó Ocidental Paraibano, respectivamente (IBGE, 1992). Sua localização geográfica está compreendida, aproximadamente, entre as latitudes 06°34'31,2" - 06°59'24,1" S e entre as longitudes 36°37'57,1" - 37°02'44,2" W (Sistema de Referência Geocêntrico para as Américas 2000), possuindo, em relação ao nível do mar, uma altitude média de aproximadamente 322 metros.

Figura 7 - Representação geográfica dos Municípios que compõem a Área de Estudo.



Fonte: Próprio Autor.

Tabela 4 - Dados Populacionais, com indicação da Área da Unidade Territorial, Densidade Demográfica e Altitude, dos municípios da Área de Estudo.

Município	UF	População (hab)				Área da Unidade Territorial (km ²)	Dens. Demog. (hab/km ²)	Altitude (m)
		Total ¹	Urbana ¹	Rural ¹	Total ²			
Carnaúba dos Dantas	RN	7.429	6.028	1.401	8.119	246,3	30,24	297
Jardim do Seridó		12.113	9.835	2.278	12.395	367,6	32,86	236
Parelhas		20.354	17.084	3.270	21.408	513,5	39,67	266
Santana do Seridó		2.526	1.653	873	2.670	188,4	13,41	304
Junco do Seridó	PB	6.643	4.369	2.274	7.104	170,4	38,98	590
Santa Luzia		14.719	13.479	1.240	15.336	455,7	32,30	299
São José do Sabugi		4.010	2.579	1.431	4.134	206,9	19,38	333
São Mamede		7.748	5.929	1.819	7.745	530,7	14,60	253
TOTAL		75.542	60.956	14.586	78.911	2.679,5	27,68*	322,25*

Legenda: ¹ Censo Populacional de 2010. Fonte: IBGE, 2010.

² Estimativa Populacional para 2018. Fonte: DOU, 2018.

* Valores Médios.

No ano de 2010, conforme dados do último censo populacional, (IBGE, 2010) os municípios que compõem a área de estudo possuíam uma população residente total de 75.542 habitantes, dos quais 60.956 (o que corresponde a aproximadamente 80,7 %) residiam na área urbana, conforme expresso na Tabela 4, que também demonstra dados referentes à estimativa populacional de tais municípios para o ano de 2018 (BRASIL, 2018). É possível constatar, quando se considera a totalidade da área de estudo, que os municípios mais densamente povoados são Parelhas, no Rio Grande do Norte e Junco do Seridó, na Paraíba, enquanto que, os municípios de São Mamede, na Paraíba e Santana do Seridó, no Rio Grande do Norte, são aqueles que apresentam as menores densidades demográficas.

Em termos de geologia, os municípios estão inseridos na Província Borborema, cuja nomenclatura foi inserida em 1977 para descrever, do ponto de vista geotectônico, o mosaico de faixas de dobramentos e maciços granítico-gnássico-migmatíticos geralmente estruturados em forma de leque na direção geral N-NE e que compreende uma região composta por terrenos estabilizados ao final do processo geológico de formação das cadeias de montanhas chamado orogênese brasileira (ALMEIDA et al., 1977), abrangendo formações geológicas das eras paleoproterozoica e neoproterozoica presentes nos Complexos Caicó e Serra dos

Quintos e no Grupo Seridó (Formações Equador e Jucurutu) (CPRM, 2005; TRINDADE et al., 2008; SILVA et al., 2010; HASUI et al., 2012).

Os tipos de solo que predominam nos municípios componentes da área de estudo, conforme classificação atual do Sistema Brasileiro de Classificação de Solos adotado pela EMBRAPA são os Luvisolos e os Neossolos, caracterizados por apresentar uma elevada fertilidade natural, textura arenoargilosa, além de serem bastante suscetíveis a processos erosivos. Sua principal utilização ocorre com a agricultura de subsistência, que é limitada principalmente pela escassez de água na região aliada à alta pedregosidade do solo, e com a pecuária extensiva, praticada em condições precárias (CPRM, 2005; EMBRAPA, 2013).

Quanto aos recursos hídricos, os municípios estão inseridos nos domínios das bacias hidrográficas dos Rios Paraíba, Piranhas - Açú, Piranhas e Seridó, e sub-bacias dos rios Taperoá, Seridó e Carnaúba, com 11 afluentes principais e algumas dezenas de tributários, responsáveis pela alimentação de uma considerável quantidade de açudes, cuja água armazenada é utilizada para fins de abastecimento humano. Os cursos d'água da área de estudo possuem um regime de escoamento intermitente e um padrão de drenagem do tipo dendrítico (CPRM, 2005).

O clima dos municípios da área de estudo é do tipo semiárido, apresentando uma temperatura média anual variando entre 18 a 33°C e uma precipitação média anual que varia entre 431,8 a 571,6 mm, com distribuição irregular. Devido ao clima local, conforme consta no Plano Nacional de Combate à Desertificação (PNCD), os municípios de Parelhas e Jardim do Seridó possuem características que os inserem como áreas suscetíveis à desertificação, na categoria denominada 'Muito Grave'. Em linhas gerais, os municípios apresentam uma vegetação que pode ser enquadrada numa caatinga hiperxerófila, de caráter mais seco, abundante em cactáceas e plantas de porte mais baixo, espalhadas e alguns arbustos com espinhos, e também se enquadra numa Caatinga Subdesértica do Seridó, composta por arbustos e árvores baixas, ralas e de xerofitismo acentuado. As espécies que se destacam são o pereiro, xique-xique, macambira, jurema-preta, mandacaru, faveleiro, facheiro e marmeleiro (CPRM, 2005).

Quanto às atividades econômicas, os municípios se apresentam concentrados em um número limitado de setores da economia, a saber: Agricultura, Agropecuária, Extrativismo, Comércio, Mineração e Indústria de Transformação. Em linhas gerais, as atividades econômicas principais da maioria dos municípios são a Agricultura, a Agropecuária e o Comércio. Em alguns municípios (Carnaúba dos Dantas, Jardim do Seridó e Santana do

Seridó), o Extrativismo ganha importância. No caso do município de Parelhas, por exemplo, a Mineração possui destaque (CPRM, 2005).

4.2 COLETA DAS AMOSTRAS DE ROCHA

O mapeamento da área foi realizado para coleta de amostras de rocha, considerando os afloramentos encontrados nas localidades e que apresentassem níveis de radioatividade diferenciados. A identificação de tais afloramentos ocorreu através da análise de relatórios emitidos pelo Projeto Seridó NE-301 (BRASIL, 1973), os quais contêm a descrição da localização aproximada de alguns pontos considerados anômalos. Com base nesta análise prévia, os referidos pontos, quando encontrados, foram avaliados, com o auxílio de um detector gama portátil do tipo discriminador.

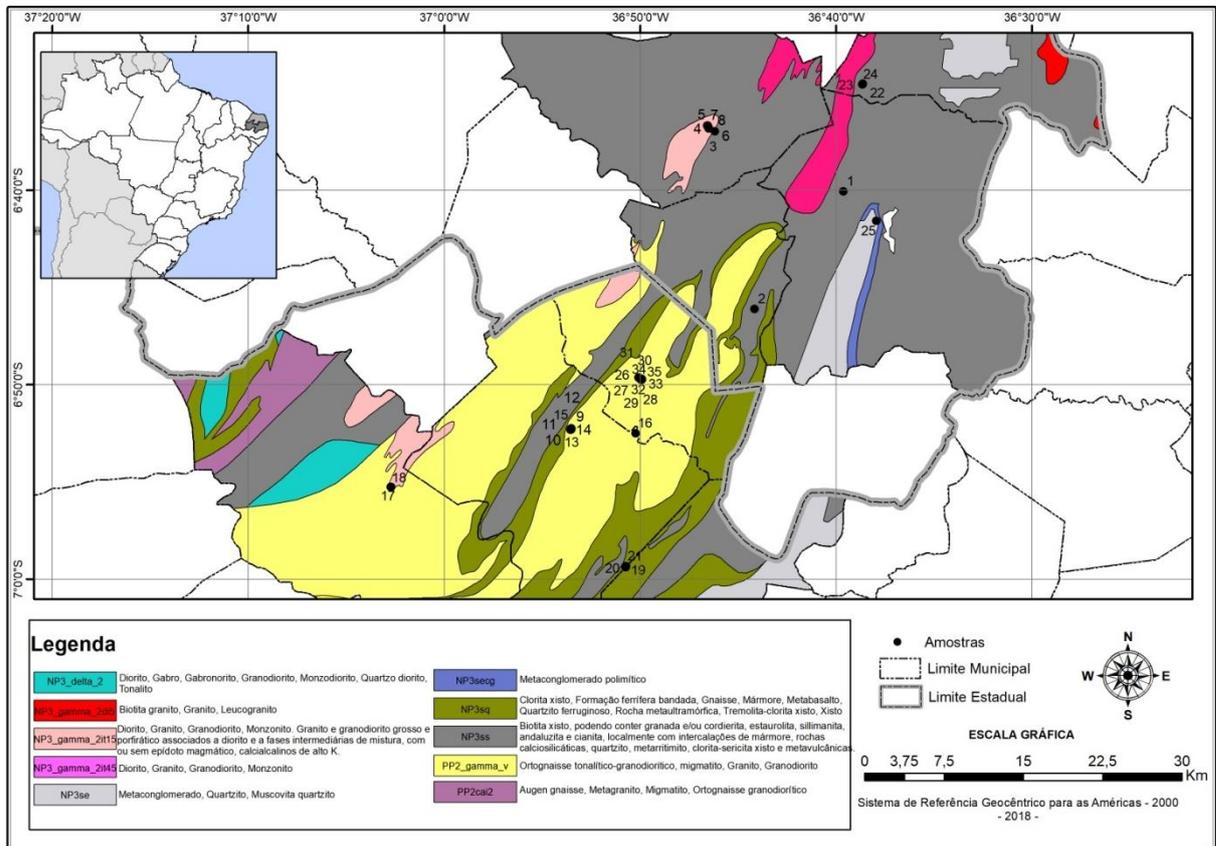
O detector de campo utilizado possui uma sonda combinada com cintiladores de NaI(Tl) e Germanato de Bismuto (BGO), cujos volumes respectivos são de aproximadamente 350 e 103 cm³. O conjunto de detecção é composto por uma sonda gama, cuja taxa de contagem máxima que pode ser registrada é de 250.000 pulsos por segundo; por uma unidade de controle e por um analisador multicanal com 512 canais.

No caso das localidades onde não foram realizados nenhum tipo de monitoramento com as características propostas no presente estudo, foram investigados os afloramentos presentes nas áreas em análise, buscando verificar os níveis de radioatividade existentes. De cada ponto amostral, num total de 35, foram coletados aproximadamente 3 kg de rocha, sendo desprezadas as superfícies que apresentassem a ação do intemperismo.

Estes pontos foram expressos na Figura 8, que traz informações do Serviço Geológico do Brasil (CPRM) sobre a área de estudo, em relação ao conjunto de rochas individualizadas e delimitadas com base nos seus caracteres litológicos - a chamada unidade litoestratigráfica. A área, no contexto geológico, está inserida na Província Borborema-Seridó, que engloba uma grande quantidade de tipos rochosos, destacando-se: granitos, granodioritos, dioritos, gnaisses, paragnaisses, pegmatitos, ortognaisses tonalítico-granodioríticos, migmatitos, biotitas-xisto; paragnaisses quartzo-feldspáticos com biotita, tendo óxidos de ferro, muscovita, epidoto, apatita e zircão como minerais acessórios, com intercalações de anfibolitos, mármore, quartzitos, micaxistos, rochas cálcio-silicáticas, formações ferríferas (os chamados BIFs), intercalações de metaconglomerados e rochas granitóides de suites

peraluminosas e calcialcalinas (CPRM, 2005; TRINDADE et al., 2008; HASUI et al., 2012; LIRA et al., 2016).

Figura 8 - Mapa contendo os pontos de coleta georeferenciados e informações geológicas da área de estudo.



Fonte: Próprio Autor e CPRM - Unidade Litoestratigráfica.

4.3 PREPARO E ACONDICIONAMENTO DAS AMOSTRAS DE ROCHA

O preparo das amostras ambientais foi realizado utilizando as instalações do Laboratório de Tecnologia Mineral (LTM), pertencente ao Departamento de Engenharia de Minas (DEMINAS) da Universidade Federal de Pernambuco. As amostras tiveram a sua granulometria reduzida (< 1,0 mm). Para isso, foram adotados os procedimentos padrão do laboratório, utilizando britadores de mandíbulas e moinhos de rolos grande e pequeno.

Após o tratamento, as amostras de rocha foram homogeneizadas, quarteadas e acondicionadas em recipientes de polietileno com capacidade volumétrica aproximada de 100 cm³, hermeticamente fechados. Após um período mínimo de 40 dias, necessário para o estabelecimento do equilíbrio radioativo secular entre os radionuclídeos de meias-vidas curtas, foram analisadas em espectrômetro gama de alta resolução.

4.4 ANÁLISE ESPECTROMÉTRICA GAMA DAS AMOSTRAS DE ROCHA

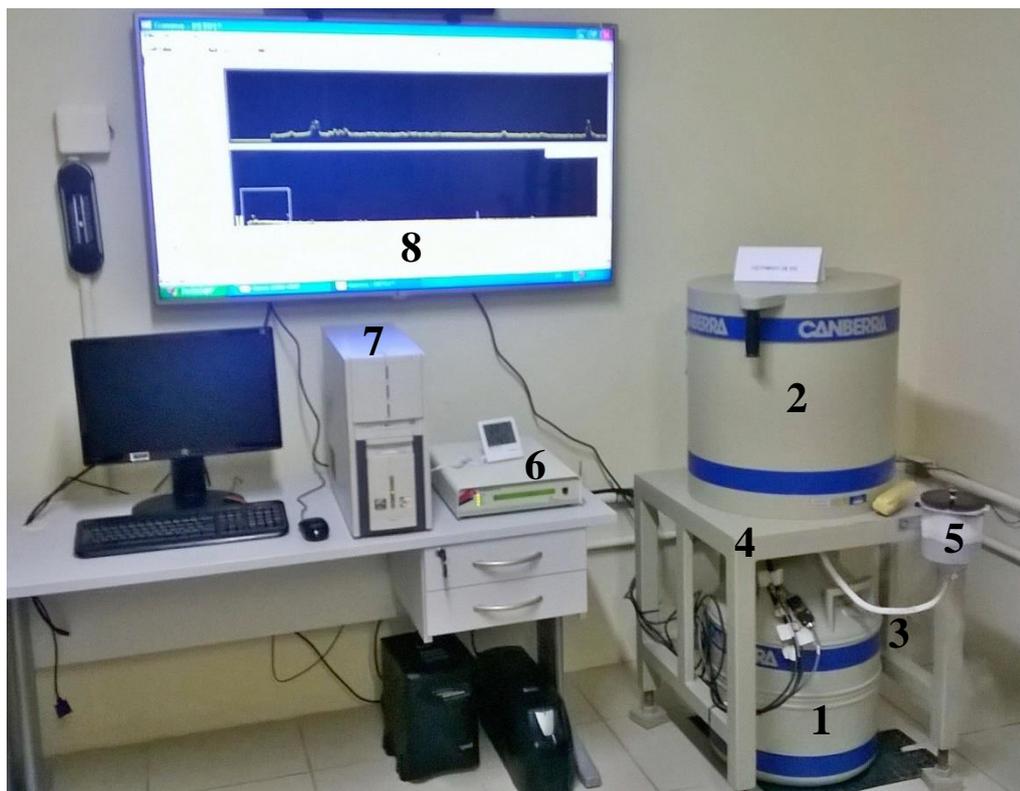
Após o período de acondicionamento, as amostras foram medidas utilizando o detector semicondutor de germânio hiperpuro (HPGe) pertencente ao Laboratório de Radioquímica e Análise Nuclear (LABRAN), do Departamento de Energia Nuclear (DEN) da Universidade Federal de Pernambuco (UFPE). Nos subtópicos que se seguem, serão abordadas características referentes ao sistema de medidas utilizado na aquisição das análises espectrométricas, bem como, o arranjo montado para a realização dos experimentos.

4.4.1 Sistema de Medidas

O Sistema de medidas utilizado nas análises espectrométricas (Figura 9) é constituído por um detector de germânio hiperpuro (HPGe), de formato cilíndrico e coaxial com janela de berílio, diâmetro externo igual a 4,54 cm e volume ativo de 41,1 cm³. Buscando minimizar os efeitos secundários da radiação ionizante, o sistema foi envolvido por uma blindagem de Pb com baixa radiação de fundo e espessura aproximada de 6,5 cm e uma superfície delgada constituída por camadas de Cu e Cd. O detector possui resolução de 1,8 keV para a energia de 1.332 keV do ⁶⁰Co e uma eficiência relativa intrínseca de 25%.

O arranjo experimental inclui ainda um pré-amplificador, modelo EAGLE Plus MCA (*Multichannel analyzer*), digital com 4.096 canais e um software Genie® 2000, ambos da marca Canberra®. O pré-amplificador opera a uma tensão de 3 kV, conforme a orientação do fabricante e o multicanal tem como função converter os pulsos lineares em sinais digitais, realizando a separação por intervalos de energia. Através do software Genie® 2000 foi possível à aquisição de dados, armazenamento, exibição e análise dos espectros gamas adquiridos.

Figura 9 - Sistema de Medidas com detector HPGe.



Fonte: Próprio Autor.

Legenda: (1-Dewar para $N_2(l)$); 2-Detector HPGe; 3-Mangueira para transferência de $N_2(l)$; 4-Suporte da blindagem de Pb; 5-Alimentador de $N_2(l)$; 6-MCA; 7-Sistema computacional; 8-Visualização dos Espectros).

4.4.2 Parâmetros considerados na realização das análises

A realização das análises ambientais propostas no presente estudo considerou os parâmetros abaixo relacionados para a composição do arranjo experimental.

- **Tempo de análise:** as amostras foram analisadas no detector HPGe, por um período de 86.400 segundos cada, propiciando a obtenção de uma boa estatística de contagem e, conseqüentemente, resultados com maior nível de confiança.
- **Correção do Tempo Morto:** foi realizado de forma automática pelo sistema de medidas, considerando ajustes para compensação do tempo de operação do detector para cada análise.
- **Geometria de Contagem:** foi padronizada com a utilização dos recipientes de polietileno, com características anteriormente descritas, posicionados a 0 cm do

detector, sem interposição de barreiras, onde adicionou-se 100 g de cada amostra, para a aquisição de dados.

- **Qualificação e Quantificação dos Radionuclídeos:** os radionuclídeos foram qualificados com base nas energias gamas emitidas, conforme orientação da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA TEC DOC 619),
 - Para o ^{238}U , foram utilizadas as transições gama do ^{234}Th (63,29 keV, com probabilidade de emissão gama de 4,84%; 92,38 keV, com probabilidade de emissão gama de 5,58%);
 - Para o ^{226}Ra , as energias do ^{214}Pb (295,21 keV, com probabilidade de emissão gama de 18,5%; 351,92 keV, com probabilidade de emissão gama de 35,8%) e do ^{214}Bi (609,31 keV; com probabilidade de emissão gama de 44,8%);
 - Para o ^{232}Th , as energias do ^{228}Ac (338,33 keV, com probabilidade de emissão gama de 11,3%; 911,07 keV, com probabilidade de emissão gama de 26,6%; 968,90 keV, com probabilidade de emissão gama de 16,2%);
 - O ^{40}K foi determinado diretamente por sua própria transição gama (1.460,8 keV com 10,67% de probabilidade de emissão).

A quantificação dos radionuclídeos ocorreu através do cálculo das atividades registradas, diretamente relacionadas às áreas líquidas de cada fotopico, contabilizadas em termos de contagens. Os espectros obtidos foram analisados usando o software Canberra Genie[®] 2000, versão 3.0. Com base nas transições de raios gama (em keV), as concentrações de atividade para o radionuclídeo foram calculadas, conforme as Equações 9 e 10.

4.4.3 Calibração do Sistema de Medidas

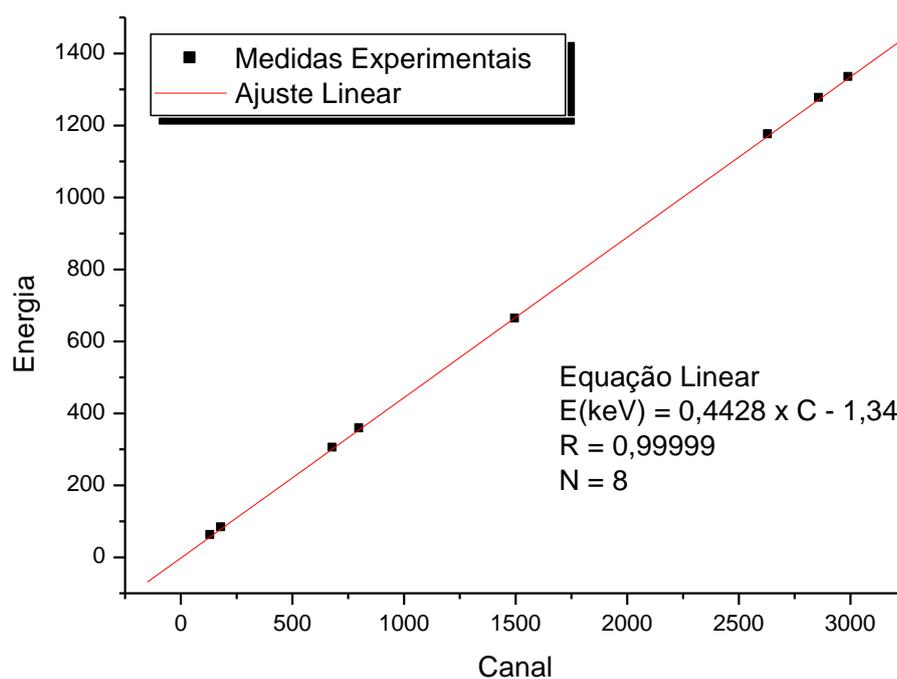
A calibração em energia do sistema de medidas e arranjo experimental adotado foi realizada mediante a utilização de fontes padrão pontuais e seladas de ^{241}Am , ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{22}Na e ^{60}Co , certificadas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) e pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA), pertencentes ao Laboratório de Metrologia de Radiações Ionizantes (LMRI) do Departamento de Energia Nuclear (DEN) da UFPE. Estas fontes, cujas informações são descritas na Tabela 5, foram escolhidas por apresentarem fotopicos bem definidos em uma ampla faixa de energia (59,54 a 1.332,50 keV).

Tabela 5 - Dados referentes às Fontes Pontais utilizadas na Calibração do Sistema de Medidas.

Fonte Padrão	T _{1/2} (anos)	E (keV)	Probabilidade de Emissão (%)	A (μCi)	Data de Referência
²⁴¹ Am	432,2	59,54	36,00	1,33	17/08/2005
		81,00	34,11		
¹³³ Ba	10,5	302,85	18,30	1,00	Jun/98
		356,02	61,94		
¹³⁷ Cs	30,2	661,66	85,10		
²² Na	2,6	1.274,54	99,93		
⁶⁰ Co	5,27	1.173,24	99,86		
		1.332,50	99,98		

Fonte: TECDOC-619 - IAEA (1991).

Para o procedimento de calibração, as fontes foram posicionadas na superfície do detector, sem interposição de barreiras e com tempo morto ajustado. Estas fontes foram medidas individualmente por um período de 1.800 segundos, tempo considerado necessário para a obtenção de uma boa estatística de contagem, em conformidade com a atividade de cada padrão. Após as aquisições, realizou-se um ajuste dos canais, usando os recursos do software Genie-2000 da Canberra®, com base no documento técnico da Agência Internacional de Energia Atômica TECDOC-619 (IAEA, 1991). A partir disso, foi possível obter a reta de calibração do sistema de medidas (Figura 10), que correlaciona as posições dos canais centrais de cada uma das regiões de interesse com as transições gama objeto deste estudo.

Figura 10 - Reta de Calibração do Sistema de Medidas com detector HPGe.

A partir dos parâmetros experimentais obtidos na reta de calibração presente na Figura 9, foi possível determinar a Equação 4, utilizada para correção dos dados experimentais e para determinação das energias gama de interesse detectáveis pelo sistema de medidas em função da localização dos canais centrais.

$$E = 0,4428 \times C - 1,34 \quad (4)$$

Nesta equação, E representa a energia (keV) a ser determinada; C, é o Canal Central.

4.4.4 Curva de Eficiência

Para a construção da curva de eficiência do sistema de medidas, foram utilizados padrões secundários de ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{152}Eu e ^{241}Am , cujas atividades iniciais foram certificadas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) - Rio de Janeiro. A escolha destes radionuclídeos ocorreu pelo fato de formarem um espectro com ampla faixa energética que abrange toda a região de interesse das energias gama alvo deste estudo, obtendo-se assim, uma boa estatística de contagem e, conseqüentemente, um modelo matemático satisfatório.

Os referidos padrões foram preparados no Laboratório de Radioecologia e Controle Ambiental (LARCA), atendendo os protocolos de segurança previamente estabelecidos, utilizando 100 g de rocha com densidade semelhante às amostras coletadas, dopados com os padrões radioativos supramencionados.

A dopagem foi realizada com o acréscimo gradativo e uniforme dos materiais radioativos à matriz ambiental. O procedimento foi realizado com o auxílio de uma pipeta previamente calibrada, em recipiente especial previamente descontaminado, buscando facilitar a homogeneização do material radioativo à matriz. O protocolo de limpeza do referido recipiente contemplou a lavagem utilizando detergente neutro e enxagues com água potável, solução aquosa de ácido nítrico a 1,0 mol/L, etanol absoluto e água deionizada, respectivamente.

Após a dopagem, os padrões foram colocados para secagem à temperatura ambiente. Em seguida, cada um foi transferido para um recipiente de polietileno de características semelhantes aos utilizados no armazenamento das amostras ambientais, sendo hermeticamente fechados para a realização das aquisições de medidas em espectrometria gama nas dependências do LABRAN, realizadas nas seguintes condições: tempo de contagem de 86.400 segundos; padrões posicionados a 0 cm do detector, sem interposição de barreiras;

temperatura ambiente padronizada em aproximadamente 23°C; umidade relativa do ar em cerca de 52%.

Realizadas as medidas e analisados os espectros, foram determinadas, as eficiências utilizadas na construção da curva com os dados descritos na Tabela 6, para cada transição gama característica, considerando as recomendações presentes no documento técnico N° 619 da Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA, 1991). Para a elaboração do cálculo das eficiências em energia, utilizou-se a Equação 2.

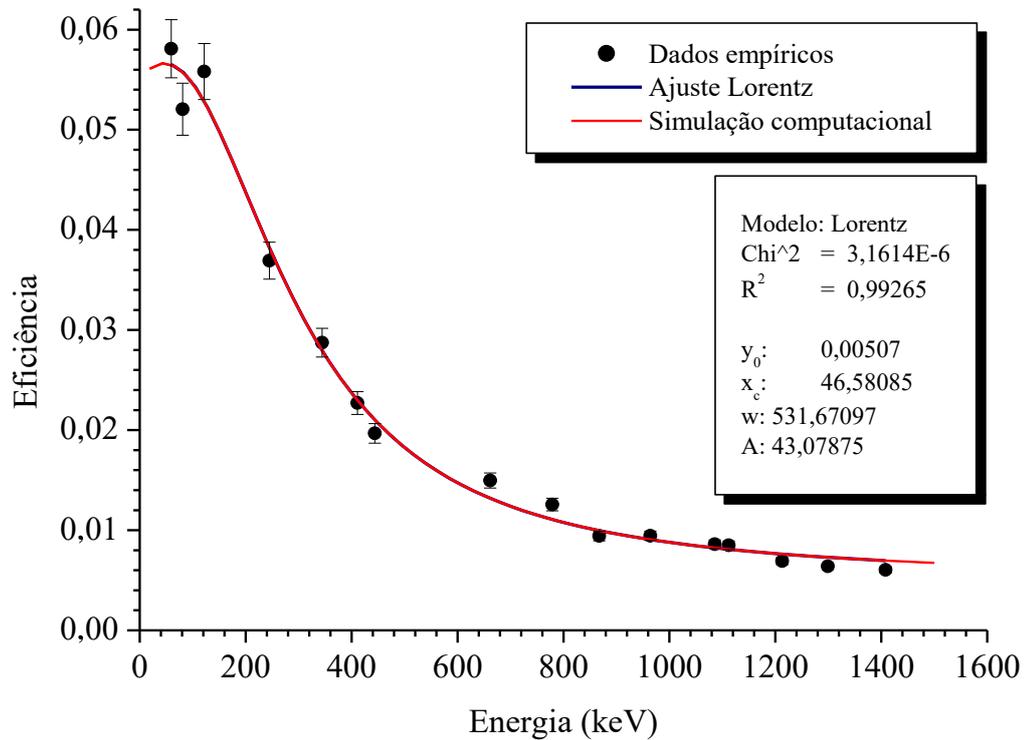
Tabela 6 - Dados utilizados para a elaboração de Curva de Eficiência.

Fonte Padrão	E (keV)	γ	ϵ
²⁴¹ Am	59,54	0,3600	0,058096771
¹³³ Ba	81,00	0,3411	0,052049078
¹³⁷ Cs	661,66	0,851	0,014965286
	121,78	0,2837	0,05581477
	244,70	0,0753	0,036920186
	344,28	0,2657	0,028730306
	411,13	0,0224	0,022703823
	443,96	0,0312	0,019672632
	778,90	0,1297	0,012566583
¹⁵² Eu	867,39	0,0421	0,009421376
	964,06	0,1463	0,00944845
	1085,84	10,13	0,00860493
	1112,09	13,54	0,008494861
	1212,97	1,41	0,006913736
	1299,15	1,63	0,006391957
	1408,02	20,85	0,006036064

Fonte: TECDOC-619 - IAEA (1991).

Diante disso, através da utilização de programa computacional específico, foi elaborado o gráfico que representa a curva de eficiência, expresso na Figura 11, que correlaciona as eficiências de contagens com as energias gama características de cada radionuclídeo emissor. Esta curva se constitui como o ponto de partida na determinação das eficiências de contagens experimentais dos radionuclídeos em análise no presente estudo, utilizadas para a elaboração dos cálculos de suas atividades específicas conforme Equações 9 e 10.

Figura 11 - Curva de Eficiência em Energia do Sistema de Medidas.



O ajuste da função Lorentz e a simulação computacional propiciaram que fosse obtida a Equação 5, utilizada para a determinação das eficiências em energia ajustadas para os radionuclídeos objetos de análise.

$$y = y_0 + \frac{2A}{\pi} \times \left(\frac{w}{4(x - x_c)^2 + w^2} \right) \quad (5)$$

Nesta equação, y corresponde à eficiência em energia a ser calculada; x , a energia gama de interesse; y_0 , A , π , x_c e w são parâmetros de ajuste da curva próprios da função gráfica utilizada, expressos na Figura 10.

4.4.5 Limites de Detecção e Atividades Mínimas Detectáveis

A estimativa do menor sinal a ser detectado com segurança pelo sistema de medidas, definindo assim, um limite de detecção para uma determinada emissão em análise, é algo a ser

considerado, principalmente no que se refere às medidas de determinadas matrizes, cujos níveis de radiação são considerados baixos, como em muitos dos casos das amostras ambientais.

Conceitualmente, Scheibel (2006) define o limite de detecção (LD) em espectrometria gama, como sendo a medida da habilidade de um espectrômetro detectar um fóton de raio gama, mesmo que existam interferentes, como por exemplo, a radioatividade natural, o espalhamento Compton de raios gama de alta energia originados na fonte e os ruídos provenientes do sistema de medidas. O LD depende de alguns fatores como: o tipo do detector utilizado na análise, o tipo da amostra analisada, a radiação de fundo, a energia da radiação, a geometria de contagem e o tempo de aquisição das medidas.

Para o presente estudo, foram efetuadas medidas da radiação de fundo, em alternância com as amostras em análise, sendo mantida a padronização dos recipientes já descritos (neste caso, vazios), o posicionamento de contagem e o tempo de aquisição no detector (86.400 s). Após a determinação das contagens referentes ao *background* do laboratório, os dados correspondentes foram aplicados na Equação 6 (KNOLL, 1989), possibilitando o cálculo do limite de detecção para o detector HPGe.

$$LD = 4,66\sqrt{N_{BG}} + 2,71 \quad (6)$$

N_{BG} representa o número de contagens registradas para o espectro de radiação de fundo; 4,66 e 2,71 são fatores constantes que correspondem a um nível de confiança da ordem de 95%.

A partir do cálculo do limite de detecção, torna-se possível conhecer as atividades mínimas detectáveis (AMD), em Bq.kg⁻¹. Este cálculo foi realizado mediante a utilização da Equação 7 (CURRIE, 1968).

$$AMD = \frac{LD}{\epsilon \times \gamma \times t \times m} \quad (7)$$

Nesta equação, LD , é o limite de detecção; ϵ , a eficiência no fotopico em análise; γ , a probabilidade de emissão gama; t , é o tempo de análise, em segundos e m , a massa da amostra, em kg.

Assim sendo, na Tabela 7 encontram-se expressas as AMD determinadas considerando a Equação 7. Quando se observa o conjunto total de dados, expresso mais

adiante na Tabela 9, percebe-se que, em todos os pontos monitorados no presente estudo, as atividades específicas encontradas são superiores às AMD, fato que atesta a efetividade do sistema de medidas escolhido para a realização das análises, bem como a representatividade de seus resultados.

Tabela 7 - Atividades Mínimas Detectáveis pelo Sistema de Medidas.

RADIONUCLÍDEO	AMD $\pm \sigma$ (Bq.kg⁻¹)
²³⁸ U	4,86 \pm 0,08
²²⁶ Ra	1,32 \pm 0,08
²³² Th	3,00 \pm 0,14
⁴⁰ K	13,71 \pm 0,57

Fonte: Próprio Autor.

4.4.6 Determinação da área líquida

A área líquida corresponde à quantidade total de contagens registradas na região de interesse para caracterização de uma transição gama de interesse, após ser deduzida a medida de radiação de fundo (“background”, BG) e o fundo Compton (GARCÊZ, 2016). O cálculo da contagem líquida da área do fotopico foi realizado conforme descrito na Equação 8, cujo valor obtido foi utilizado na determinação da atividade de cada radionuclídeo.

$$N_{Ei} = \int_{a=u}^v X_a - N_{BG} \quad (8)$$

N_{Ei} representa a área total líquida do fotopico de interesse; u e v correspondem, respectivamente, aos canais inicial e final da região de interesse do fotopico; X_a é a contagem registrada em cada canal e N_{BG} é a contagem da radiação de fundo do laboratório.

4.4.7 Cálculo das atividades específicas do ²³⁸U, ²²⁶Ra, ²³²Th e ⁴⁰K

Com base nos resultados obtidos para cada área total líquida, assim como, das eficiências em energia para cada transição gama de interesse, a quantificação das atividades experimentais do ⁴⁰K foram realizadas com o uso da Equação 9 (IAEA, 1989 apud GARCÊZ, 2016).

$$A = \frac{N_{Ei}}{\varepsilon \times I_{\gamma} \times t \times m} \quad (9)$$

A, representa a concentração de atividade ($Bq.kg^{-1}$); N_{Ei} corresponde a área total líquida do fotopico para a energia gama analisada (contagens); ε é a eficiência de contagem, considerando a energia específica; t é o tempo de contagem (s); I_{γ} é a abundância gama do radionuclídeo em questão; e m é a massa da amostra analisada (kg).

Nos casos do ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th , o cálculo de suas atividades específicas, realizado mediante o emprego da Equação 10, considerou a média ponderada em função das transições gama características de cada radionuclídeo e suas respectivas probabilidades de emissão.

$$\bar{A} = \frac{A_1 \times \gamma_1 + A_2 \times \gamma_2 + A_3 \times \gamma_3}{\gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_3} \quad (10)$$

Onde: A_1 , A_2 e A_3 correspondem às atividades específicas calculadas através da Equação 9, para o ^{238}U , com base nas transições gama de 63,29 e 93 keV; para o ^{226}Ra , pelas energias de 295,21; 351,92 e 609,31 keV e, no caso do ^{232}Th , para as transições de 338,33; 911,21 e 968,67 keV; γ_1 , γ_2 e γ_3 são as probabilidades de emissão para cada transição gama.

4.5. CÁLCULO DOS TEORES DOS RADIONUCLÍDEOS

A estimativa dos teores do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K foi realizada mediante a utilização da Equação 11 (SANTOS JÚNIOR, 2009).

$$F_E = \frac{A_{Exp}}{A_{Esp}} \quad (11)$$

Onde: F_E corresponde ao teor do elemento, em $mg.kg^{-1}$; A_{Exp} é a atividade específica experimental de cada radionuclídeo, em $Bq.kg^{-1}$; A_{Esp} é a atividade específica teórica para cada radionuclídeo, em $Bq.mg^{-1}$, calculada através da Equação 12.

$$A_{Esp} = \frac{\ln 2 \times N_A}{T_{1/2} \times t \times M_E} \quad (12)$$

Na Equação 12, N_A representa o número de Avogadro ($6,023 \times 10^{23}$ átomos.mol⁻¹); $T_{1/2}$ é o tempo de meia vida de cada radionuclídeo; t , corresponde ao tempo ($3,155 \times 10^7$ segundos.ano⁻¹); M_E corresponde a massa atômica do radionuclídeo (kg.mol⁻¹).

4.6 ANÁLISE DAS AMOSTRAS AMBIENTAIS

Além das análises por espectrometria gama de alta resolução – realizadas na totalidade das amostras que compõem este estudo – também foram aplicadas a Exposição à Radiação Ultravioleta em câmara específica 254 nm UV-C, Análise Petrográfica e Difratomia de Raios-X. Estas últimas, em parte das amostras (Nº 8, 11, 13, 18 e 27), provenientes dos municípios de Jardim do Seridó, no Rio Grande do Norte e Santa Luzia, São Mamede e São José do Sabugi, na Paraíba, cujas atividades específicas apresentaram os valores mais elevados, buscando classificar a rocha originária quanto ao seu tipo e, no contexto mineralógico, verificar a presença de minerais radioativos, permitindo assim, estabelecer uma relação entre os minerais identificados e as atividades específicas ora encontradas.

4.6.1 Análise Petrográfica

Foi realizada com lâminas de rocha confeccionadas no Laboratório de Preparação de Amostras e Laminação do Departamento de Geologia (DGEO), da Universidade Federal de Pernambuco (UFPE) utilizando alumina nas granulometrias 180-1000µm para polimento, além de adesivo à base de resina epóxi. A avaliação destas lâminas possibilitou a descrição petrográfica da rocha, realizada no Laboratório de Petrologia I, também pertencente ao referido departamento, com o auxílio de um microscópio petrográfico, marca Olympus (BX41), equipado com sistema de luz transmitida. A captura das imagens foi realizada através de um sistema de captura digital com câmera DP-26 e software Olympus Stream, versão 1.7.

4.6.2 Difratomia de Raios X

A preparação destas amostras consistiu na padronização de sua granulometria ($\leq 0,074$

mm), com o auxílio de almofariz e pistilo, além de peneira granulométrica, no Laboratório de Radioecologia e Controle Ambiental (LARCA). No Laboratório de Materiais, do Instituto de Tecnologia de Pernambuco (ITEP), foram realizadas as análises por Difractometria de Raios X, utilizando-se de uma pequena fração destas amostras para serem efetuadas as medidas. O equipamento utilizado foi o difratômetro da marca Rigaku, modelo ultima, operando com tensão de 40 kV e corrente de 20 mA, utilizando radiação $K\alpha$ do cobre ($\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$), velocidade do goniômetro de $0,02^\circ$ por minuto, percorrendo uma faixa angular 2θ entre 2° e 80° .

Os dados provenientes da leitura das amostras no difratômetro foram coletados, processados e armazenados por software específico, propiciando o cálculo das distâncias interplanares (*d-spacing*), o que possibilitou a caracterização dos minerais presentes nas amostras, mediante a comparação com padrões de referência organizados em fichas, disponíveis em banco de dados mineralógico.

4.7 AVALIAÇÃO ESTATÍSTICA DOS DADOS

A análise estatística dos resultados foi realizada com a aplicação do teste de Shapiro-Wilk, cujo objetivo foi avaliar se o conjunto amostral aleatório é proveniente de uma distribuição normal, mediante a comparação entre os valores da estatística W e probabilidade (p-valor). Para tais valores, a variação é entre 0 e 1. O referido teste pode ser utilizado para avaliar, com nível de significância de 95%, a normalidade da distribuição de conjuntos de dados, independentemente de seu tamanho (SCUDINO, 2008).

De acordo com a Equação 13, a estatística W é calculada da seguinte forma:

$$W = \frac{\left(\sum_{i=1}^n a_i x_{(i)} \right)^2}{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2} \quad (13)$$

Onde:

X_i = são os valores ordenados de amostras (x_1 é o menor);

a_i = constantes tabeladas com níveis de significância para W.

Para a realização do Teste de Shapiro-Wilk, existem duas hipóteses:

H_0 = A amostra provém de uma população normal;

H_1 = A amostra não provém de uma população normal.

Admitidas às hipóteses, e calculada a variável W , comparando o valor obtido com o valor existente em uma Tabela de Valores Críticos. No caso de $W_{\text{calculado}} < W_{\alpha}$, deve-se rejeitar H_0 ao nível de significância α . Caso contrário, ($W_{\text{calculado}} > W_{\alpha}$) a hipótese H_0 deve ser considerada válida.

4.8 ESTIMATIVA DA DOSE DE RADIAÇÃO GAMA NATURAL

4.8.1 Cálculo da taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural

A taxa de dose absorvida proveniente da radiação gama natural ao ar livre a 1 m de distância da superfície (\dot{D}), expressa uma conexão direta entre as concentrações de radioatividade dos radionuclídeos naturais, considerando que estejam uniformemente distribuídos no ambiente, e sua exposição. Através de fatores de conversão, estabelecidos pela UNSCEAR em 2000, conforme expresso na Equação 14, é possível calcular a taxa de dose absorvida gama natural no ar (em $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$) por unidade de concentração de atividade específica (inicialmente obtida em $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$). Tais fatores (0,462, 0,604 e 0,0417 $\text{nGy}\cdot\text{h}^{-1}$), multiplicados pela concentração de atividade específica medida, permitem estimar, respectivamente, a taxa de dose correspondente as séries radioativas do ^{238}U e ^{232}Th , além do ^{40}K , sendo a soma destas, correspondente à taxa de dose absorvida total (UNSCEAR, 2000; MUSA et al., 2011).

$$\dot{D} = (0,462A_U) + (0,604A_{Th}) + (0,0417A_K) \quad [\text{nGy}\cdot\text{h}] \quad (14)$$

Onde: A_{Th} , A_U e A_K são, respectivamente, as atividades do ^{238}U , ^{232}Th e do ^{40}K para as amostras de rochas ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$), calculadas conforme Equações 9 e 10.

4.8.2 Cálculo da taxa de dose equivalente efetiva devido a radiação gama natural

Considerando o fato de que a taxa de dose equivalente efetiva para radiação gama natural a 1 m da superfície é um dado normalmente utilizado na área de proteção radiológica, efetuou-se a sua estimativa, levando em consideração um período de exposição de um ano, segundo o relatório da UNSCEAR (1993, 2000) apud RANGASWAMY et al. (2016), formulada pela Equação 15.

$$H = \dot{D} \times 8.760 \times 0,2 \times 0,7 \times 10^{-6} \quad (15)$$

Onde: H é a taxa de dose equivalente efetiva de radiação gama natural no ar a 1 m da superfície (mSv.a^{-1}); \dot{D} é a taxa de dose absorvida devido a radiação gama natural (nGy.h^{-1}); 0,2 é o fator ocupacional (ocupação parcial); 0,7 é o coeficiente de conversão da taxa de dose absorvida para taxa de dose equivalente efetiva e o valor 10^{-6} é o fator de ajuste dos submúltiplos da unidade, nSv.a^{-1} para mSv.a^{-1} .

Quando se fala em áreas mundiais com níveis elevados de radiação natural - as chamadas HBNR (do acrônimo inglês "*High Background Natural Radiation*") - a literatura classifica, com base nas doses efetivas anuais dos habitantes, estas áreas em quatro níveis: baixo, quando H é inferior à 5 mSv.a^{-1} (ou aproximadamente duas vezes a média global de $2,4 \text{ mSv.a}^{-1}$ relatada pela UNSCEAR, 2000); médio (entre 5 e 20 mSv.a^{-1}); alto (entre 20 e 50 mSv.a^{-1}); e muito alto ($> 50 \text{ mSv.a}^{-1}$). Esta classificação, expressa por Sohrabi (2013), que considerou os limites de dose da ICRP (1991, 2007), a média global da UNSCEAR (2000) e as Normas Internacionais Básicas de Segurança (IBSS, 1996, 2011), abrange todas as áreas ou complexos potencialmente afetados, contaminados com radionuclídeos naturais ou áreas de radioatividade tecnologicamente melhorada ou ainda áreas propensas a radônio.

Com base na classificação supracitada, sugere-se, no presente estudo, outra forma de classificação de áreas, quanto aos seus níveis de radiação natural. Neste caso, avaliando exclusivamente os níveis de radiação natural externa. Para isso, foi realizado um ajuste matemático, tomando como referência a taxa média de dose equivalente efetiva ambiental de $0,07 \text{ mSv.a}^{-1}$ (UNSCEAR, 2008). Desta forma, tais áreas seriam classificadas em quatro níveis: baixo, quando H é inferior à $0,15 \text{ mSv.a}^{-1}$ (ou aproximadamente duas vezes a taxa de dose equivalente efetiva para ambientes externos de $0,07 \text{ mSv.a}^{-1}$ relatada pela UNSCEAR); médio (entre $0,15$ e $0,58 \text{ mSv.a}^{-1}$); alto (entre $0,58$ e $1,46 \text{ mSv.a}^{-1}$); e muito alto ($> 1,46 \text{ mSv.a}^{-1}$).

4.8.3 Rádio Equivalente

A atividade equivalente do rádio, também chamada de rádio equivalente (Ra_{eq}), é um outro parâmetro utilizado para estimar a atividade devida a contribuição dos principais emissores gamas das séries do ^{238}U , do ^{232}Th e do ^{40}K . A Equação 16 foi utilizada para

calcular o valor do Ra_{eq} (FLORES et al., 2005).

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1,43A_{Th} + 0,077A_K \quad (16)$$

A_{Ra} , A_{Th} e A_K são respectivamente, atividades específicas empíricas do ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K .

De acordo com a UNSCEAR (2000), o efeito anual da dose produzida pelo Ra_{eq} quantificado em 370 Bq.kg^{-1} equivale a $1,0 \text{ mSv}$, que é o limite de dose para indivíduos do público. Em um contexto geral, a aplicação do Ra_{eq} objetiva certificar os materiais de construção já que a avaliação de tal parâmetro se constituiu numa forma rápida e alternativa para estimar os níveis de radioatividade natural presente em tais materiais e preservar a saúde das populações.

4.9 ÍNDICES DE RISCO DA RADIAÇÃO GAMA

4.9.1 Índices de Risco de Radiação Externa (H_{ex}) e Interna (H_{in})

O cálculo dos índices de risco de radiação externa e interna foram realizados através das Equações 17 e 18, respectivamente. O H_{ex} corresponde à avaliação do risco devido unicamente à exposição externa à radiação gama dos radionuclídeos naturais presentes nos materiais de construção das habitações. Seu valor de referência é equivalente ao valor limite do Ra_{eq} (370 Bq kg^{-1}).

Já o H_{in} , busca avaliar os níveis de exposição interna, atribuídos ao ^{222}Rn e seus produtos de decaimento, e que causam danos relevantes ao sistema respiratório, sendo considerado, para efeito de cálculo, a metade do valor limite de Ra . Para que o risco associado à radioatividade seja considerado insignificante, o valor destes índices deve ser menor ou igual a uma unidade. (BERETKA; MATHEW, 1985; VEIGA et al., 2006; RANGASWAMY et al., 2016).

$$H_{ex} = \frac{A_{Ra}}{370} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (17)$$

$$H_{in} = \frac{A_{Ra}}{185} + \frac{A_{Th}}{259} + \frac{A_K}{4810} \leq 1 \quad (18)$$

Onde: A_{Ra} , A_{Th} e A_K são as atividades específicas do ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , em Bq.kg^{-1} .

5 RESULTADOS E DISCUSSÕES

5.1 ATIVIDADES ESPECÍFICAS E TEORES DOS RADIONUCLÍDEOS

Na Tabela 8, estão apresentados os dados radiométricos em relação ao ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K . Nela, constam suas atividades específicas e respectivos desvios padrões, em Bq.kg^{-1} , os teores dos radionuclídeos, em mg.kg^{-1} , além de parâmetros dosimétricos, como a Taxa de Dose Equivalente Efetiva e Rádio Equivalente.

Na referida Tabela, é possível observar que, os menores níveis de atividades específicas em rochas são encontrados para o ^{232}Th , que variou entre 14,5 a 645,3 Bq.kg^{-1} , com um valor médio \pm desvio de $152,8 \pm 111,0 \text{ Bq.kg}^{-1}$. O ^{40}K apresenta valores com menor amplitude, entre 484,4 a 2.413,9 Bq.kg^{-1} e valor médio \pm desvio de $1.249,8 \pm 453,8 \text{ Bq.kg}^{-1}$. É possível verificar um coeficiente de variação de 36,3% para as atividades do ^{40}K , significativamente inferior ao calculado para o ^{232}Th , que foi de 72,7%, o que evidencia uma distribuição mais homogênea para o ^{40}K . Outro aspecto a ser observado para o ^{40}K , é que, as atividades determinadas são superiores aos resultados obtidos para os demais radionuclídeos em 51,4% do total de amostras, principalmente nos afloramentos monitorados em Parelhas, Santana do Seridó e Jardim do Seridó, no Rio Grande do Norte e, na Paraíba, nos municípios de Junco do Seridó, Santa Luzia e São José do Sabugi.

Por sua vez, o ^{226}Ra , apresenta atividades específicas entre 17,9 a 5.325,3 Bq.kg^{-1} com um valor médio \pm desvio de $887,6 \pm 972,4 \text{ Bq.kg}^{-1}$. Já o ^{238}U , apresentou níveis mais elevados do que ^{226}Ra e ^{232}Th , em aproximadamente 69% das amostras. Suas atividades variaram entre 17,7 a 11.464,7 Bq.kg^{-1} , com valor médio \pm desvio de $1.913,6 \pm 2.358,9 \text{ Bq.kg}^{-1}$. O ^{238}U e o ^{226}Ra , por sua vez, apresentaram as maiores dispersões de dados, exemplificadas pelos elevados desvios-padrão amostrais.

Ao serem intercomparadas as atividades específicas obtidas, verificou-se que o ^{238}U apresentou níveis mais elevados que o ^{226}Ra em 68,6% das amostras, predominantemente nas ocorrências existentes em Carnaúba dos Dantas, no Rio Grande do Norte e nos municípios de São Mamede e São José do Sabugi, no Estado da Paraíba; os dois últimos, com registros bastante diferenciados de atividades específicas. O fenômeno oposto ($^{226}\text{Ra} > ^{238}\text{U}$) também foi observado em 28,6% das amostras, principalmente em Jardim do Seridó/RN e nos municípios paraibanos de Junco do Seridó e de Santa Luzia, em parte das amostras coletadas.

Tabela 8 - Dados Referentes às Amostras de Rocha da Área de Estudo.

Código	Local de Coleta	Coordenadas		Atividade Específica (Bq.kg ⁻¹) ± Desvio Padrão σ				F _E (mg.kg ⁻¹)				H (mSv.a ⁻¹)	Ra _{eq}	
		S	W	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K			
1	P	06° 40' 02,7"	36° 39' 38,4"	238,4 ± 71,4	162,5 ± 5,4	144,2 ± 63,4	1492,8 ± 38,6	19,3	4,5E-06	35,4	5,8	0,32	483,6	
2	SS	06° 46' 06,0"	36° 44' 09,8"	123,6 ± 25,5	89,4 ± 0,7	31,5 ± 12,9	867,1 ± 29,4	10,0	2,5E-06	7,7	3,4	0,14	201,3	
3	JDS	06° 36' 48,6"	36° 46' 30,2"	187,0 ± 87,0	213,6 ± 5,2	143,2 ± 12,6	1310,2 ± 36,2	15,1	5,9E-06	35,2	5,1	0,28	519,3	
4		06° 36' 45,5"	36° 46' 31,5"	684,4 ± 103,8	870,5 ± 23,9	116,8 ± 21,6	914,8 ± 30,2	55,4	2,4E-05	28,7	3,5	0,52	1107,9	
5		06° 36' 40,2"	36° 46' 33,3"	319,5 ± 76,7	385,5 ± 12,9	128,9 ± 14,5	1219,7 ± 34,9	25,9	1,1E-05	31,6	4,7	0,34	663,7	
6		06° 36' 39,8"	36° 46' 34,3"	267,0 ± 97,5	426,9 ± 9,4	146,1 ± 16,6	1278,4 ± 35,8	21,6	1,2E-05	35,9	4,9	0,32	734,2	
7		06° 36' 40,7"	36° 46' 34,8"	210,8 ± 73,7	230,8 ± 32,3	86,9 ± 55,4	927,5 ± 30,4	17,1	6,4E-06	21,3	3,6	0,23	426,6	
8		06° 36' 57,7"	36° 46' 11,5"	2467,7 ± 567,9	1313,6 ± 43,4	645,3 ± 56,2	484,4 ± 22,0	199,8	3,6E-05	158,5	1,8	1,90	2273,7	
9		06° 52' 19,3"	36° 53' 33,4"	4012,2 ± 822,9	1149,5 ± 40,5	150,6 ± 53,1	1497,6 ± 38,7	324,9	3,2E-05	36,9	5,8	2,46	1480,2	
10		06° 52' 18,1"	36° 53' 32,1"	2078,4 ± 478,9	2172,9 ± 69,5	254,6 ± 74,6	1094,2 ± 33,1	168,3	6,0E-05	62,5	4,2	1,42	2621,2	
11	SL	06° 52' 17,6"	36° 53' 32,4"	4864,6 ± 1243,7	1659,1 ± 44,9	162,9 ± 13,8	1178,4 ± 34,3	393,9	4,6E-05	39,9	4,5	2,94	1982,7	
12		06° 52' 16,3"	36° 53' 33,2"	3079,8 ± 839,1	1152,9 ± 32,9	155,2 ± 52,9	1222,9 ± 34,9	249,4	3,2E-05	38,1	4,7	1,92	1469,0	
13		06° 52' 16,8"	36° 53' 33,2"	6471,2 ± 1776,5	2350,6 ± 81,1	192,8 ± 20,2	1588,1 ± 39,8	523,9	6,5E-05	47,3	6,1	3,89	2748,6	
14		06° 52' 15,4"	36° 53' 31,7"	206,4 ± 86,2	468,2 ± 13,1	152,5 ± 14,6	1604,0 ± 40,0	16,7	1,3E-05	37,4	6,2	0,31	809,8	
15		06° 52' 15,2"	36° 53' 31,2"	467,8 ± 106,9	678,5 ± 22,5	170,3 ± 26,3	1715,2 ± 41,4	37,9	1,9E-05	41,8	6,6	0,48	1054,2	
16		06° 52' 30,6"	36° 50' 14,3"	1875,2 ± 479,0	190,2 ± 7,9	116,8 ± 15,2	1535,7 ± 39,2	151,8	5,3E-06	28,7	5,9	1,23	475,6	
17		SM	06° 55' 16,1"	37° 02' 43,4"	2063,0 ± 542,5	1090,4 ± 16,2	66,7 ± 1,0	1064,0 ± 32,6	167,0	3,0E-05	16,4	4,1	1,27	1267,7
18			06° 55' 16,1"	37° 02' 44,2"	11464,7 ± 3167,8	5325,3 ± 160,7	45,8 ± 59,9	1985,1 ± 44,5	928,3	1,5E-04	11,2	7,7	6,63	5543,6
19	JS	06° 59' 24,1"	36° 50' 45,1"	223,7 ± 67,8	403,6 ± 9,3	41,5 ± 4,4	2413,9 ± 49,1	18,1	1,1E-05	10,2	9,3	0,28	648,8	
20		06° 59' 20,4"	36° 50' 43,7"	118,3 ± 35,3	94,1 ± 5,2	21,8 ± 14,5	2223,4 ± 47,1	9,6	2,6E-06	5,3	8,6	0,20	296,4	
21		06° 59' 20,2"	36° 50' 45,2"	846,2 ± 155,2	1245,1 ± 41,6	163,3 ± 16,9	1364,2 ± 36,9	68,5	3,4E-05	40,1	5,3	0,67	1583,6	
22	CD	06° 34' 31,2"	36° 38' 38,9"	1647,2 ± 385,0	825,6 ± 26,9	118,5 ± 16,5	835,3 ± 28,9	133,4	2,3E-05	29,1	3,2	1,06	1059,4	
23		06° 34' 32,3"	36° 38' 38,8"	3022,3 ± 875,0	1121,3 ± 23,3	131,9 ± 25,8	689,2 ± 26,2	244,7	3,1E-05	32,4	2,7	1,85	1363,1	
24		06° 34' 32,9"	36° 38' 39,5"	1130,2 ± 272,9	732,2 ± 12,2	142,8 ± 13,1	768,6 ± 27,7	91,5	2,0E-05	35,1	2,9	0,79	995,7	
25		P	06° 41' 34,4"	36° 37' 57,1"	17,7 ± 0,7	17,9 ± 0,7	46,3 ± 20,4	506,6 ± 22,5	1,4	4,9E-07	11,4	1,9	0,07	123,1

Continua na Próxima Página

Continuação da Tabela 8

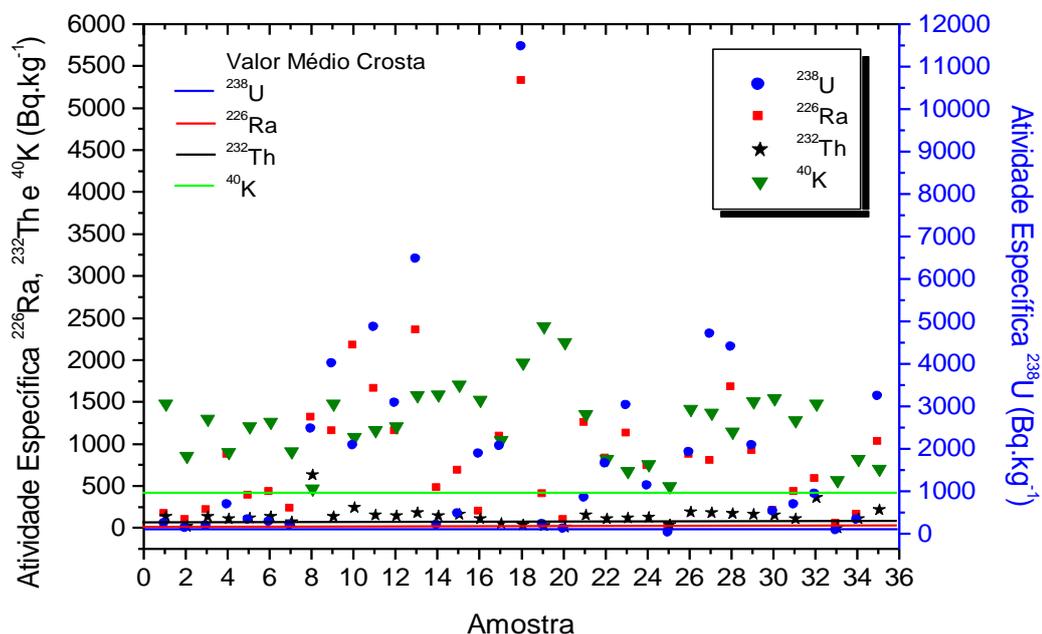
26	06° 49' 42,8"	36° 49' 55,6"	1907,8 ± 572,5	865,7 ± 18,9	198,8 ± 23,3	1427,7 ± 37,8	154,5	2,4E-05	48,8	5,5	1,30	1259,9
27	06° 49' 42,0"	36° 49' 56,4"	4698,1 ± 867,1	801,6 ± 34,8	191,4 ± 71,1	1384,8 ± 37,2	380,4	2,2E-05	47,0	5,4	2,87	1181,9
28	06° 49' 44,6"	36° 49' 57,3"	4406,0 ± 968,1	1671,6 ± 34,9	187,7 ± 20,6	1154,6 ± 33,9	356,8	4,6E-05	46,1	4,5	2,69	2028,8
29	06° 49' 42,9"	36° 49' 58,7"	2070,3 ± 703,2	913,7 ± 24,6	174,3 ± 68,9	1521,4 ± 39,0	167,6	2,5E-05	42,8	5,9	1,38	1280,1
30	06° 49' 42,9"	36° 49' 59,2"	533,1 ± 202,2	205,7 ± 5,7	168,0 ± 71,6	1559,5 ± 39,5	43,2	5,7E-06	41,3	6,0	0,51	566,0
31	06° 49' 41,4"	36° 49' 59,8"	693,2 ± 204,9	428,5 ± 12,3	120,3 ± 49,3	1294,3 ± 35,9	56,1	1,2E-05	29,5	5,0	0,55	700,3
32	06° 49' 38,6"	36° 50' 04,8"	933,3 ± 320,5	583,2 ± 13,5	372,5 ± 162,7	1491,2 ± 38,6	75,6	1,6E-05	91,5	5,8	0,88	1230,6
33	06° 49' 38,5"	36° 50' 05,1"	82,6 ± 14,6	47,9 ± 9,8	14,5 ± 5,3	578,1 ± 24,0	6,7	1,3E-06	3,6	2,2	0,09	113,2
34	06° 49' 44,6"	36° 49' 55,6"	325,9 ± 156,8	153,5 ± 5,4	118,2 ± 52,9	835,3 ± 28,9	26,4	4,2E-06	29,0	3,2	0,31	386,8
35	06° 49' 44,9"	36° 49' 55,7"	3239,2 ± 1083,2	1024,6 ± 23,3	224,9 ± 85,5	716,2 ± 26,8	262,3	2,8E-05	55,2	2,8	2,04	1401,5
	Média		1913,6	887,6	152,8	1249,8	154,9	2,5E-05	37,5	4,8	1,26	1202,4
	Mín.		17,7	17,9	14,5	484,4	1,4	4,9E-07	3,6	1,9	0,07	113,2
	Máx.		11464,7	5325,3	645,3	2413,9	928,3	1,5E-04	158,5	9,3	6,63	5543,6
	25%		252,7	222,2	116,8	890,9	20,5	5,9E-06	28,7	3,4	0,32	542,7
	75%		2745,0	1135,4	172,3	1509,5	222,3	3,1E-05	42,3	5,8	1,87	1435,2
	C.V. (%)		123,3	109,5	72,7	36,3	123,3	109,5	72,7	36,3	107,11	84,1

Legenda: P - Parelhas/RN; SS - Santana do Seridó/RN; JDS - Jardim do Seridó/RN; SL - Santa Luzia/PB; SM - São Mamede/PB; JS - Junco do Seridó/PB; CD - Carnaúba dos Dantas/RN; SJS - São José do Sabugi/PB.

A diferença nos níveis de atividade específica obtidos para o ^{238}U e ^{226}Ra sugere a ocorrência de desequilíbrio radioativo, que pode ser atribuído às condições geológicas das amostras coletadas que, apesar de desprezadas as superfícies intemperizadas, se encontram em áreas próximas à superfície dos afloramentos monitorados, que é suscetível a fatores como o clima, o intemperismo, a hidrologia superficial e a topografia local. Segundo Vasconcelos (2010), a existência destes valores contribui para o rompimento do estado de equilíbrio radioativo. Além disso, de acordo com Kastner [1999], fatores relacionados à natureza química dos vários nuclídeos radioativos que formam a série do urânio conduzem a um comportamento geoquímico diversificado, interferindo em seu transporte e deposição, ocasionando diferentes tipos de desequilíbrio. O comportamento químico do U e do Ra, pertencentes à mesma família, são bem diferentes. Se o urânio é fixado por combinação como fosfato e vanadato de uranila, o mesmo não acontece com o Ra^{2+} , podendo este ser lixiviado à medida que se forma, provocando, assim, um desequilíbrio nesta série.

Na Figura 12, observa-se o panorama geral dos radionuclídeos analisados, tornando possível a comparação das atividades específicas com os valores médios globais, de acordo com a UNSCEAR (2008), que são de 33 Bq.kg^{-1} , para o ^{238}U ; 32 Bq.kg^{-1} , para o ^{226}Ra ; 45 Bq.kg^{-1} , para o ^{232}Th e 412 Bq.kg^{-1} , para o ^{40}K . Verifica-se destacável superioridade dos dados empíricos, em relação aos valores expressos pela UNSCEAR. Tal fenômeno foi registrado em todas as amostras avaliadas para o ^{40}K ; em 97,1% dos casos do ^{238}U e ^{226}Ra e em 88,6% das amostras do ^{232}Th .

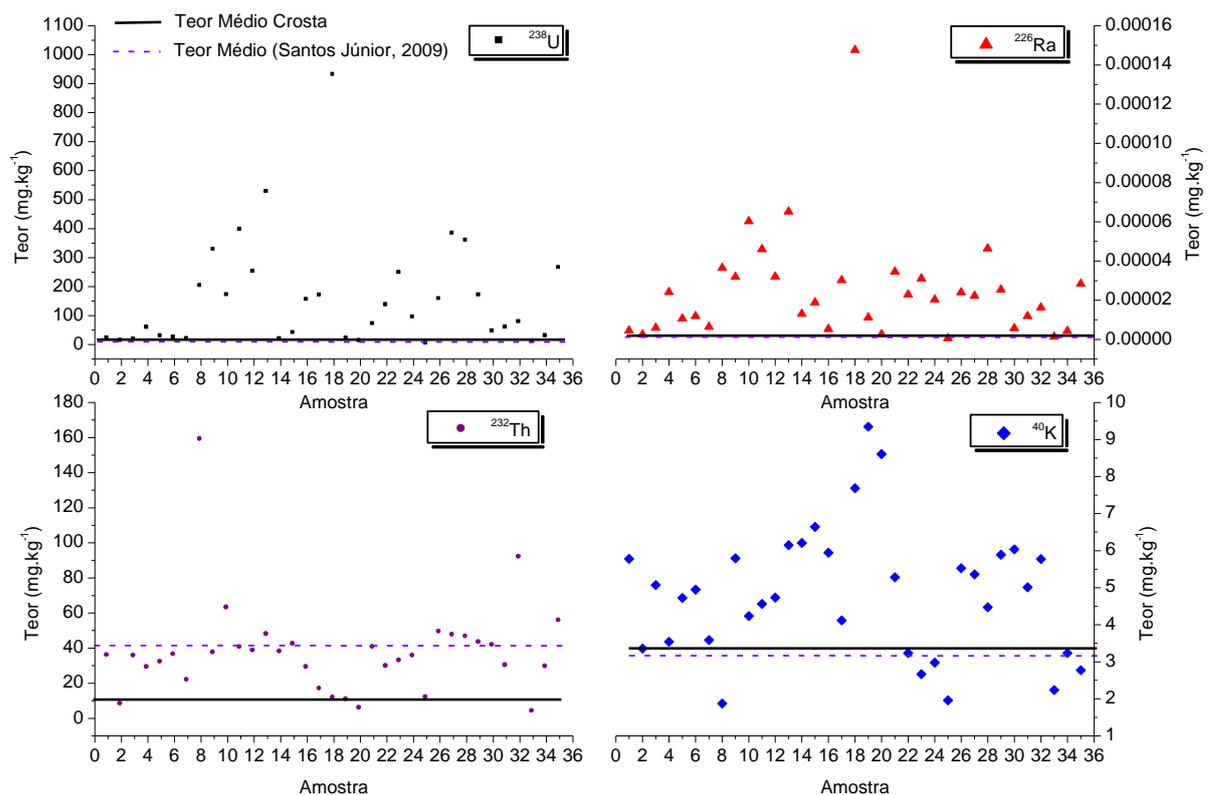
Figura 12 - Atividades Específicas dos Radionuclídeos na Área de Estudo e respectivos valores médios globais de referência.



Considerando as atividades específicas encontradas, foram determinados teores de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K que, para tais radionuclídeos, respectivamente, apresentaram variações entre 1,4 a 928,3 mg.kg^{-1} ; $4,9 \times 10^{-7}$ a $1,5 \times 10^{-4}$ mg.kg^{-1} ; 3,6 a 158,5 mg.kg^{-1} ; 1,9 a 9,3 mg.kg^{-1} . Tais resultados são apresentados graficamente na Figura 12. Os maiores teores encontrados foram do ^{238}U , seguido do ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra , com o ^{238}U e ^{226}Ra mais correlacionados, teoricamente justificável, considerando que são elementos pertencentes à mesma série radioativa natural.

Ainda baseado na Figura 13, é possível estabelecer uma análise comparativa dos teores dos radionuclídeos monitorados com outros registros existentes na literatura. A linha contínua indica o teor médio de cada radionuclídeo na crosta terrestre como sendo de 2,8 mg.kg^{-1} para o ^{238}U , 8×10^{-7} mg.kg^{-1} para o ^{226}Ra , 10,7 mg.kg^{-1} para o ^{232}Th e 3,3 mg.kg^{-1} para o ^{40}K , conforme indicado por Eisenbud e Gesell (1997).

Figura 13 - Teores de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K nas amostras de rocha obtidas na Área de Estudo.



Fonte: Próprio Autor.

Já a linha tracejada, indica os teores médios destes radionuclídeos na crosta, em uma área reconhecidamente anômala em urânio, no município de Pedra, Pernambuco, monitorada por Santos Júnior (2009) e que apresentou valores médios de 2,0 mg.kg^{-1} para o ^{238}U , 6×10^{-7} mg.kg^{-1} para o ^{226}Ra , 40,2 mg.kg^{-1} para o ^{232}Th e 3,1 mg.kg^{-1} para o ^{40}K .

Verifica-se que os dados obtidos no presente estudo, exibem comportamento semelhante ao evidenciado nas atividades específicas e apresentam, para todos os radionuclídeos analisados, teores em níveis superiores, tanto em relação à média na crosta terrestre (entre 77,1 e 97,1% das amostras) quanto à média descrita na literatura (entre 31,4 e 97,1% das amostras).

5.1.1 Atividades Específicas - Análise Intercomparativa utilizando Estudos Mundiais

Na Tabela 9, são elencados alguns estudos realizados em algumas partes do mundo onde foram medidos os níveis de atividade específica dos radionuclídeos primordiais em amostras de rocha e que, para isso, utilizaram do mesmo sistema de medidas e tipo de detector. A escolha de tais critérios permitiu a realização de uma análise comparativa dos resultados deste estudo com outros existentes na literatura, tomando como referência os valores médios por eles atribuídos, permitindo que se tenha uma ideia da representatividade dos dados obtidos, a nível mundial.

Dentre os estudos utilizados nesta avaliação comparativa constam alguns casos, (SALEH et al., 2011; MALCZEWSKI; ZABA, 2012; ALMOUR et al., 2014; RANGASWAMY et al., 2016; BACHAMA et al., 2017) onde os níveis de atividades específicas identificados foram considerados baixos, segundo os autores. Quando comparados a eles, os níveis médios de atividade específica do presente estudo foram entre 1,44 e 91,12 vezes superiores para todos os radionuclídeos em questão.

Tabela 9 - Comparativo de Atividades Específicas: Presente estudo com outros realizados mundialmente.

Regiões	Valores Médios e Amplitudes, em Bq.kg ⁻¹				Referência
	²³⁸ U	²²⁶ Ra	²³² Th	⁴⁰ K	
Paraíba e Rio Grande do Norte, Nordeste Brasileiro	1913,63 (17,73 - 11464,67)	887,62 (17,95 - 5325,33)	152,8 (14,48 - 645,30)	1249,85 (484,38 - 2413,95)	Presente Estudo
Nigéria	26,99 (11,06 - 44,26)	-	61,91 (40,10 - 89,17)	91,7 (27,75 - 291,53)	Bachama et al., 2017
Egito	1031 (397 - 2032)	786 (378 - 1496)	85 (ND - 200)	765 (572 - 971)	Bahi et al., 2017
Egito	192 (98 - 289)	178 (90 - 303)	66 (13 - 99)	193 (111 - 287)	Fares et al., 2017

Continua na Próxima Página

Continuação da Tabela 9

Iêmen	-	581,14 (6 - 3089)	1305,78 (7 - 12513)	2137 (111 - 2954)	Abdurabu et al., 2016
Egito	1766 (864 - 3104)	2070 (963 - 3309)	57 (28,4 - 106)	117 (91 - 169)	Gaafar et al., 2016
Índia	-	41,08 (22,12 - 59,8)	86,26 (52,54 - 117,87)	869,29 (607,98 - 1108,24)	Rangaswamy et al., 2016
Egito	46,39 (17,79 - 85,92)	-	65,76 (26,09 - 121,13)	1186,45 (940,6 - 1322,9)	Darwish; Abul-Nasr; El-Khayatt, 2015
Malásia	23,87 (2 - 67)	-	36,07 (2 - 85)	361 (45 - 722)	Almour et al., 2014
França	21 (9 - 29)	-	7 (0,7 - 18)	217 (18 - 392)	Malczewski; Zaba, 2012
Iêmen	-	21,79 (10,3 - 33,3)	19,5 (10,5 - 30,8)	399,3 (144,7 - 573,7)	Saleh et al., 2011
Egito	15443,6 (9,5 - 183675,7)	-	7999,1 (6,1 - 94314,2)	3221,78 (ND - 7894,6)	El-Dine et al., 2011
Turquia	-	235,5 (94 - 637)	215,5 (120 - 601)	1248,6 (1047 - 1527)	Canbaz et al., 2010
Rio Grande do Norte, Nordeste Brasileiro	-	98,5 (90 - 107)	252,5 (219 - 286)	1533 (1414 - 1653)	Malanca; Gaidolfi, 1996

Outros estudos, por sua vez, (CANBAZ et al., 2010; EL-DINE et al., 2011; DARWISH et al., 2015; GAAFAR et al., 2016; ABDURABU et al., 2016; FARES et al., 2017; BAHÍ et al., 2017), apresentaram como característica, a ocorrência de atividades específicas em níveis extremamente elevados, o que caracterizou tais áreas como sendo de alto nível de radiação de fundo, sendo recomendada a adoção de medidas para minimizar os riscos relativos à exposição à radiação. Quando comparados a estes casos, os resultados obtidos para esta pesquisa apresentaram, na maioria das situações, níveis médios de atividades específicas superiores aos registrados nesses estudos.

Em comparação aos estudos conduzidos por Darwish e colaboradores (2015), Gaafar e colaboradores (2016), Bahi e colaboradores (2017) e Fares e colaboradores (2017), ambos no Egito, os dados observados neste estudo estiveram entre 1,05 e 41,25 vezes superiores à literatura. No primeiro, 8 amostras de granito provenientes de Saint Katherine tiveram os níveis de atividades específicas e parâmetros dosimétricos avaliados. No segundo, foram avaliadas 12 amostras de rochas fosfáticas presentes no deserto do centro-leste do Egito. No terceiro, 9 amostras, também de rochas fosfáticas, foram monitoradas. No último, por sua vez, foram analisadas 30 amostras extraídas de montanhas graníticas, na costa do Mar Vermelho,

cujos níveis dos radionuclídeos detectados apresentaram grandes variações em seus valores, devido à diversidade de formações e texturas da rocha na área estudada.

Quando comparado aos estudos conduzidos por Canbaz e colaboradores (2010), que determinaram os níveis de radioatividade em 10 amostras de granitóides; El-Dine e colaboradores (2011), que avaliaram os níveis de radioatividade em 13 amostras de feldspato e Abdurabu e colaboradores (2016), que monitoraram 14 amostras de rochas, dentre granitos, migmatitos e arenitos, os resultados médios das atividades específicas registrados neste estudo apresentaram, em sua maioria, valores entre 1,41 e 52,35 vezes inferiores a estes registros da literatura.

Outro estudo a ser destacado foi o conduzido por Malanca e Gaidolfi (1996), no município de Santana do Matos, no Estado do Rio Grande do Norte, que avaliou 2 amostras de rocha, cujos níveis médios de atividades específicas foram 1,23 e 1,65 vezes superiores aos registrados no presente trabalho, para ^{40}K e ^{232}Th , respectivamente. Quanto ao ^{226}Ra , as amostras do presente estudo apresentaram valores médios 9,01 vezes superiores ao referido registro da literatura.

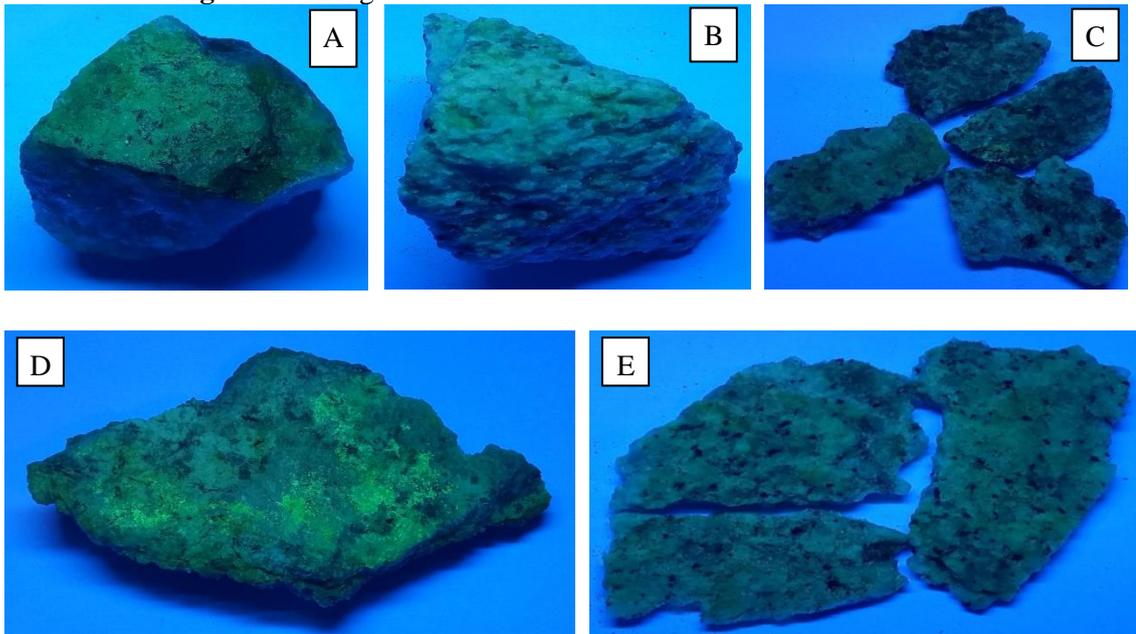
5.2 AVALIAÇÃO DE AMOSTRAS COM NÍVEIS DIFERENCIADOS DE RADIOATIVIDADE

5.2.1 Análise por Radiação Ultravioleta

A literatura (BERRY; MASON, 1966) relata que em alguns minerais - como no caso da autunita, mineral secundário de U, proveniente da alteração da uraninita - quando submetidos à radiação ultravioleta, ocorre o fenômeno de fluorescência na cor amarelo-esverdeada intensa. Daí a principal motivação em realizar este tipo de análise nas amostras em questão.

Quando expostas à radiação ultravioleta, verificou-se a presença de pontos de fluorescência, com intensidade e quantidade distintas entre elas, o que sugere a presença da autunita nestas amostras. Dentre elas, destaca-se a amostra 18, expressa na Figura 14D, proveniente de afloramento rochoso localizado no município de São Mamede/PB. Nela, foram identificados os níveis mais elevados de atividade específica para o ^{238}U ($11.464,7 \pm 3.167,8$ Bq.kg $^{-1}$) e ^{226}Ra ($5.325,3 \pm 160,7$ Bq.kg $^{-1}$).

Figura 14 - Fragmentos de Amostras de Rocha - Área de Estudo.

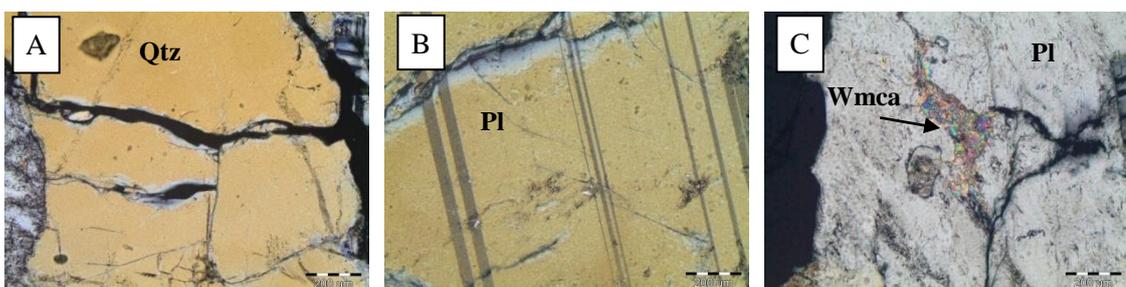


Legenda: a) Amostra 8; b) Amostra 11; c) Amostra 13; d) Amostra 18; e) Amostra 28.

5.2.2 Análise Petrográfica

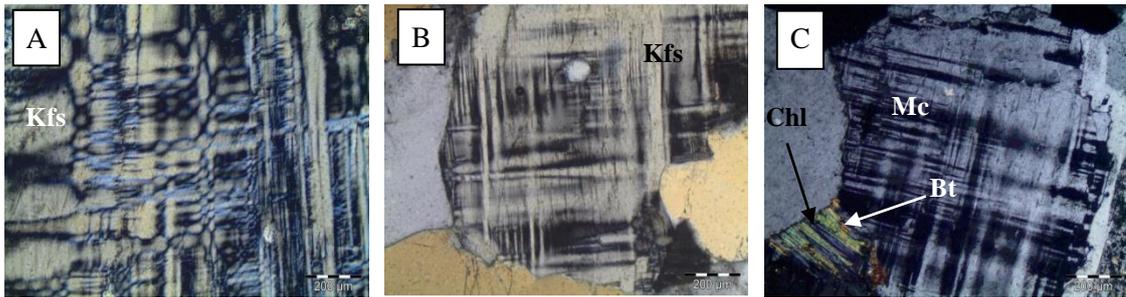
Sob a ótica petrográfica, verifica-se a presença de minerais essenciais à composição das rochas em geral, tais como o quartzo (SiO_2), cuja presença de fraturamento (Figura 15A) é bastante comum; o plagioclásio, em sua típica geminação polissintética (Figura 15B) e em alteração pelo fenômeno da sericitização, formando a mica branca (Figura 15C), além do feldspato potássico; este último, visualizado claramente em maclas de duas direções perpendiculares entre si, formando assim, a geminação xadrez, caracterizando-o como sendo o microclínio (KAlSi_3O), conforme expresso nas Figuras 16A, 16B e 16C.

Figura 15 - Fotos microscópicas de rochas: Amostra 11.



Fonte: Próprio Autor. / **Legenda:** Qtz - Quartzo; Pl - Plagioclásio; Wmca - Mica branca.

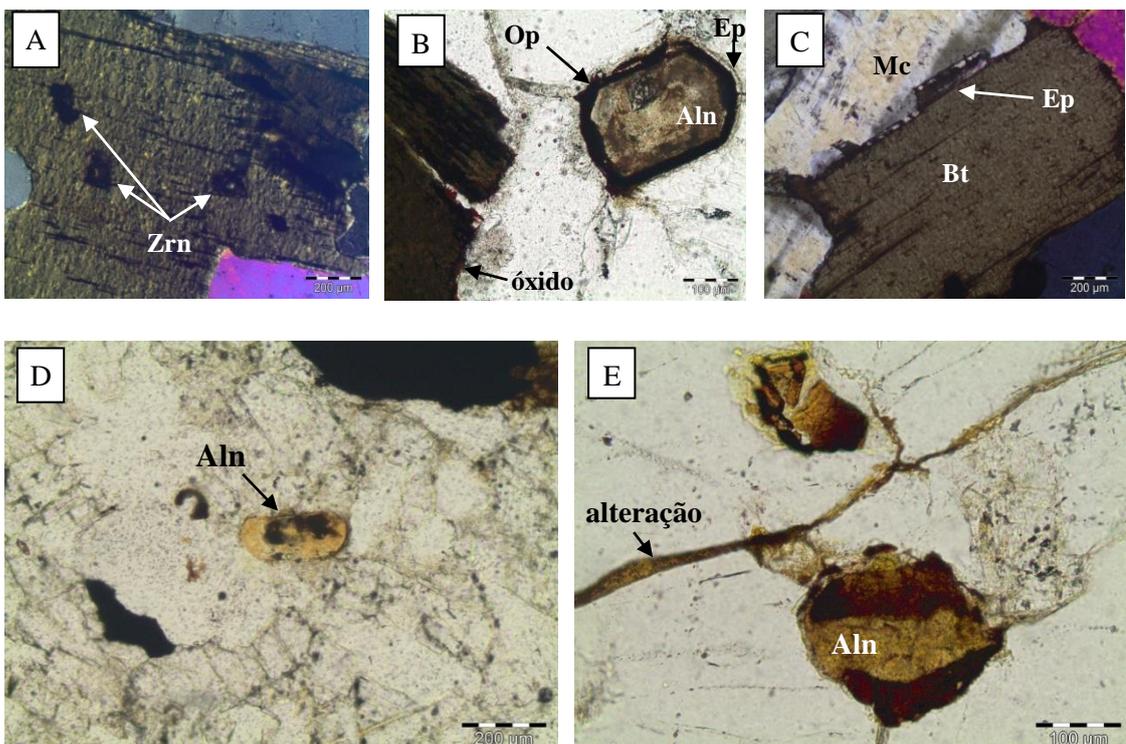
Figura 16 - Fotos microscópicas de rochas: Amostras 11 (A), 18 (B) e 28 (C).



Fonte: Próprio Autor. / **Legenda:** Kfs - Feldspato Potássico; Bt - Biotita; Chl - Clorita.

Também foi identificada a presença de minerais como a biotita $[K(Mg,Fe^{2+})_3(Al,Fe^{+3})Si_3O_{10}(OH, F)_2]$ que, assim como o microclínio, apresentam potássio em sua composição química. À biotita, normalmente estão associados outros minerais, como o zircão $[ZrSiO_4(+ Hf, U, Th, ETR)]$, a allanita $[(Ca, Mn, Ce, Y, Th, La)_2(Fe, Ti, Al)_3O(Si_2O_7)(SiO_4)(OH)]$ e o epidoto $[Ca_2Al_2(Fe^{3+}, Al)(SiO_4)(Si_2O_7)O(OH)]$, cujos registros identificados nas amostras 11 (Figura 17B) e 13 (Figuras 17A e 17C) estão expressos. Quanto aos dois últimos minerais, as Figuras 17D e 17E ilustram fato observado na amostra 18, onde grãos de epidoto alaranjados, com evidências de alteração amarelada ao longo das fraturas da rocha foram encontrados, o que sugere a presença do mineral allanita.

Figura 17 - Fotos microscópicas de rochas: Amostras 11 (B), 13 (A e C) e 18 (D e E).

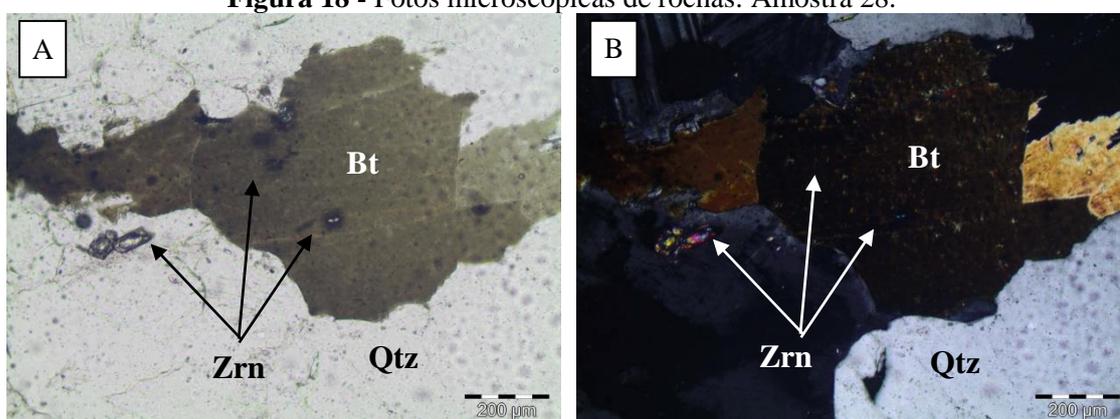


Fonte: Próprio Autor. / **Legenda:** Mc - Microclínio; Ep - Epidoto; Bt - Biotita; Zrn - Zircão; Op - Opaco; Aln - Allanita.

Ainda com relação aos minerais com ocorrência associada à biotita, destaque-se o zircão e a allanita, que apresentam elementos radioativos em sua composição, sendo conhecidos como minerais metamictos, onde ocorre o fenômeno da metamictização que, de acordo com Ewing (1994), consiste na transição do estado cristalino para um estado aperiódico ou amorfo do mineral, devido ao decaimento radioativo de U e Th presentes.

Através de tal fenômeno é que são produzidos os chamados halos pleocróicos, cuja principal característica visual é o aspecto enegrecido ao redor destes minerais e que representa a presença de variação de pleocroísmo em torno de inclusões de minerais com radioatividade, como consequência do bombardeio e alteração da estrutura cristalográfica do mineral hospedeiro a partir da inclusão, que pode variar de submilimétrica à micrométrica. São exemplos, as Figuras 17A (Amostra 13), 17B (Amostra 11) e 17D (Amostra 18), já mencionadas, além das Figuras 18A e 18B (Amostra 28). Nestes casos, a metamictização é evidenciada tanto na allanita, com suas bordas de minerais opacos, quanto na ocorrência de cristais de zircão inclusos em biotita.

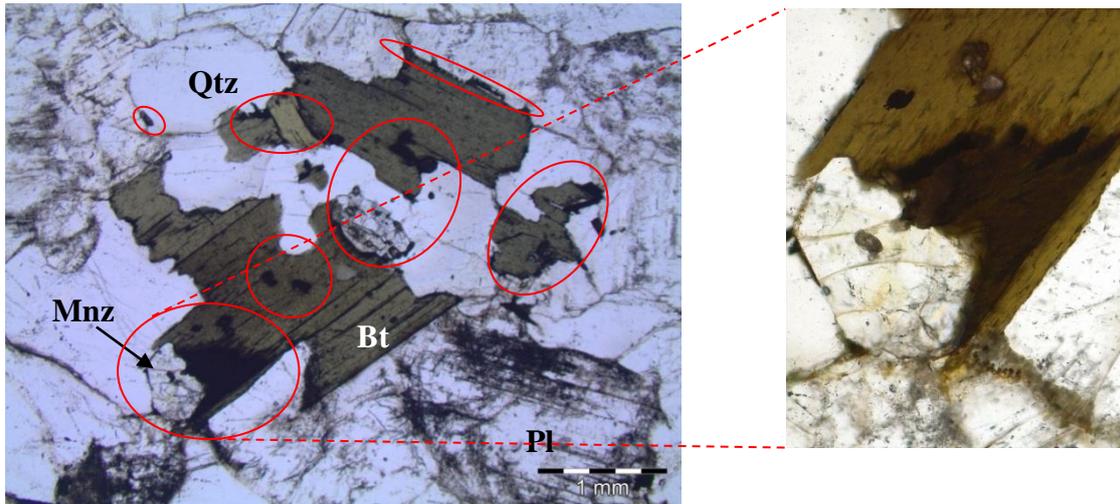
Figura 18 - Fotos microscópicas de rochas: Amostra 28.



Fonte: Próprio Autor. / **Legenda:** Bt - Biotita; Zrn - Zircão; Qtz - Quartzo.

Na Figura 19, é possível identificar a presença de fortes halos pleocróicos destacados em vermelho. Dentre eles, a ocorrência de um halo de tamanho considerável, quando comparado aos demais, devido a um grão que apresenta um fraturamento pequeno a moderado, além de um cristal subédrico, ou seja, com faces imperfeitamente formadas. A presença de tais características, conforme expresso por Souza; Teixeira; Botelho (2005), sugere na amostra 13 a presença do mineral monazita $[(Ce, La, Nd, Th, Y, Dy, Sm)(PO_4)]$, cuja relevância radiométrica é largamente conhecida.

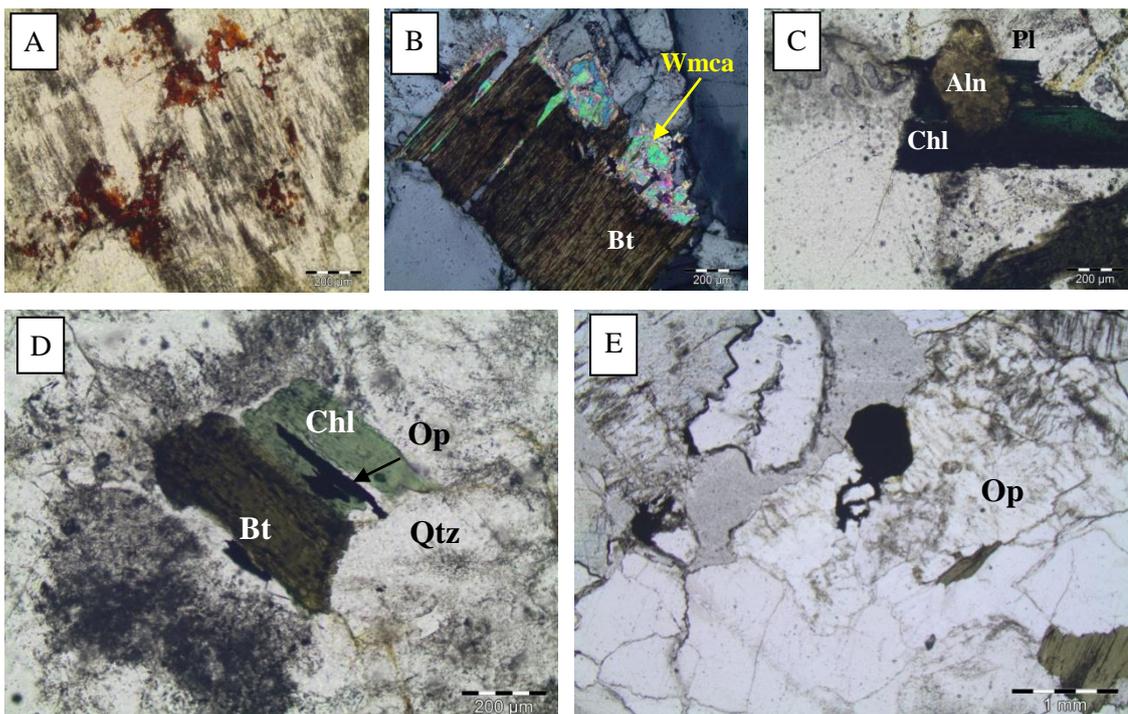
Figura 19 - Fotos microscópicas de rochas: Amostra 13.



Fonte: Próprio Autor. / **Legenda:** Mnz - Monazita; Bt - Biotita; Qtz - Quartzo; Pl - Plagioclásio.

Também foi identificada a presença de outros minerais, como no caso da amostra 18, com a ocorrência de grãos granulares anédricos de óxidos avermelhados em grãos de feldspato, sugerindo a presença de rutilo (TiO_2) (Figura 20A); da mica branca, associada a grão de biotita em suas clivagens e bordas, na amostra 11 (Figura 20B); da clorita, associada a grãos de allanita, na amostra 28 (Figura 20C) e de minerais opacos, seja associados à clorita ou biotita, como presente na amostra 28 (Figura 20D) ou mesmo dispersos na rocha, na amostra 13 (Figura 20E).

Figura 20 - Fotos microscópicas de rochas: Amostras 11 (B), 13 (E), 18 (A) e 28 (C e D).



Fonte: Próprio Autor. / **Legenda:** Wmca - Mica branca; Bt - Biotita; Chl - Clorita; Aln - Allanita; Pl - Plagioclásio; Op - Opaco; Qtz - Quartzo.

Diante de todas as informações elencadas, através da análise petrográfica das amostras, foi possível realizar a identificação destas rochas, sendo classificadas como granitos (sienogranitos) a sienitos, devido à alta composição modal de feldspato potássico, considerando a nomenclatura de rochas ígneas plutônicas proposta por Streckeisen (1974). Estas rochas possuem textura pegmatítica, devido aos tamanhos centimétricos de seus minerais essenciais, sendo por vezes, porfirítica, quando estes minerais formam fenocristais que se destacam em uma matriz mais fina.

5.2.3 Análise por Difractometria de Raios-X

Para tais amostras, a avaliação dos principais picos presentes em seus respectivos difratogramas permitiu, considerando a Equação da Lei de Bragg (Equação 3), que fossem calculadas as distâncias interplanares (d), também chamadas de *d-spacing*, em Ångström (Å), de cada pico relacionado a cada posição 2θ . Ao avaliar a Tabela 11, que contém os valores destas distâncias comparados aos de referência indicados pelo Centro Internacional de Dados de Difração - ICDD e existentes na literatura, percebe-se que, a diferença entre tais conjuntos de valores é pequena, variando dentro da margem tolerável de 10%, para a maioria dos minerais presentes e que apresentam U, Th e K em sua composição, convergindo com as informações obtidas nas análises microscópicas destas amostras.

A partir da análise dos dados presentes na Tabela 10, também foi possível verificar, nos casos dos minerais allanita, monazita e rutilo, a mesma tendência de proximidade entre as distâncias interplanares calculadas e de referência. Esta característica permite inferir a presença destes minerais nas amostras 13 e 18, respectivamente, conforme indicado pela descrição petrográfica.

A referida Tabela ainda traz em seu conjunto de informações o rol de distâncias interplanares relacionadas ao mineral autunita. Verifica-se, neste caso, que os valores calculados apresentam diferenças um pouco maiores dos valores de referência. Além disso, em parte dos conjuntos de dados, a proximidade entre esses valores não foi registrada. Este fato, aliado ao não aparecimento do mineral nas análises petrográficas, não exclui a sua presença nas amostras, mas sugere que sua ocorrência se deu apenas de maneira superficial, conforme evidenciado nos testemunhos de rocha, expressos anteriormente na Figura 14.

Tabela 10 - Distâncias Interplanares para os minerais identificados nas Amostras de Rocha Estudadas.

MINERAL	COMPOSIÇÃO QUÍMICA	REFERÊNCIA DRX*	AMOSTRA (d-spacing)				
			8	11	13	18	28
Autunita	Ca[UO ₂ .PO ₄] ₂ .10H ₂ O	10,35 (85)	9,973	-	-	-	10,108
		5,185 (65)	-	-	-	-	-
		4,930 (35)	4,701	-	4,653	-	4,232
		3,569 (100)	-	3,628	3,607	3,692	-
		3,502 (40)	-	3,356	3,391	3,365	3,485
		2,187 (40)	2,238	-	2,168	2,167	2,274
		2,074 (60)	2,127	2,105	2,040	2,128	1,984
Monazita	(Ce, La, Nd, Th)PO ₄	4,17 (3)	4,267	4,227	4,027	4,256	4,231
		3,30 (5)	3,348	3,356	3,391	3,345	3,326
		3,285 (35)	-	3,204	3,245	3,281	3,270
		2,99 (2)	2,976	-	-	3,033	2,985
		2,151 (40)	2,127	2,105	2,168	2,167	2,274
		1,963 (50)	1,971	1,981	1,975	1,985	1,984
		1,876 (30)	1,852	1,852	1,822	1,865	1,845
		1,738 (40b)	-	1,720	1,738	1,734	1,652
Allanita	(Ca, Mn, Ce, Y, Th, La) ₂ (Fe, Ti, Al) ₃ O(Si ₂ O ₇)(SiO ₄)(OH)	3,53 (43)	3,687	3,628	3,607	3,692	3,485
		2,94 (10)	2,976	-	-	2,905	2,932
		2,627 (41)	2,623	2,534	2,630	2,632	2,639
		2,182 (36)	2,238	-	2,168	2,167	2,274
		2,14 (4)	2,127	2,105	-	2,128	-
Rutilo	TiO ₂	3,247 (100)	3,198	3,204	3,245	3,281	3,223
		2,487 (50)	2,464	2,534	2,433	2,457	2,463
		2,188 (25)	2,127	2,105	2,168	2,167	2,274
		1,6874 (60)	1,660	1,720	1,676	1,711	1,652
		1,6237 (20)	-	1,604	1,667	1,626	1,607
		1,3598 (20)	1,368	1,381	1,373	1,376	1,372
		1,3465 (12)	-	1,331	-	1,373	1,319
		-	-	-	-	-	-
Zircão	(ZrSiO ₄ (+ Hf, U, Th, ETR))	4,434 (45)	4,267	4,275	4,304	4,256	4,231
		3,302 (100)	3,348	3,356	3,391	3,345	3,326
		3,29 (10)	-	3,204	3,245	3,281	3,270
		2,52 (8)	2,464	2,534	2,536	2,527	2,463
		2,066 (20)	2,127	2,105	2,040	2,128	1,984
		1,908 (14)	1,852	1,852	1,975	1,865	1,912
		1,712 (40)	-	1,720	1,732	1,711	-
		1,651 (14)	1,660	1,604	1,667	1,626	1,652
Microclínio	KAlSi ₃ O	4,22 (100)	4,267	4,227	4,304	4,2562	4,232
		3,70 (40)	3,687	3,628	3,776	3,6918	3,669
		3,37 (40)	3,348	3,356	3,391	3,3646	3,326
		3,25 (80)	-	-	-	3,2513	-
		3,24 (40)	3,198	3,204	3,245	-	3,223
Muscovita	KAl ₂ (Si ₃ Al)O ₁₀ (OH,F) ₂	10,0 (>100)	9,973	-	-	-	10,108
		4,46 (65)	-	4,275	4,304	4,2562	4,232
		3,351(>100)	3,348	3,356	3,391	3,3452	3,326
		3,21 (50)	3,198	3,204	3,195	3,2513	3,223
		2,59 (50)	2,623	-	2,630	-	2,639
		2,562 (90)	-	2,534	2,536	2,5551	-
		2,010 (75)	1,971	1,981	2,040	1,9850	1,984
Biotita	K(Mg,Fe ²⁺)3(Al,Fe ³⁺)Si ₃ O ₁₀ (OH, F) ₂	10,1 (100)	9,973	-	-	-	10,108
		3,37 (100)	3,348	3,356	3,391	3,3646	3,326
		2,66 (80)	2,623	-	2,630	2,6324	2,639
		2,45 (80)	2,464	2,534	2,433	2,4571	2,463
		2,18 (80)	2,127	2,105	2,168	2,1670	2,274
		2,00 (80)	1,971	1,981	1,975	1,9850	1,984
		1,67 (80)	1,660	1,720	1,676	1,6256	1,652
		-	-	-	-	-	-

Continua na Próxima Página

		Continuação da Tabela 10					
Quartzo	SiO ₂	3,342 (100)	3,348	3,356	3,391	3,345	3,326
		4,257 (22)	4,267	4,275	4,304	4,256	4,231
		1,8179 (14)	1,827	1,818	1,822	1,815	1,845
		1,5418 (9)	1,543	1,540	1,470	1,541	1,543
		2,457 (8)	2,464	2,534	2,433	2,457	2,463
		2,282 (8)	2,238	2,281	2,287	2,167	2,274
		1,3718 (8)	1,374	1,381	1,373	1,373	1,372

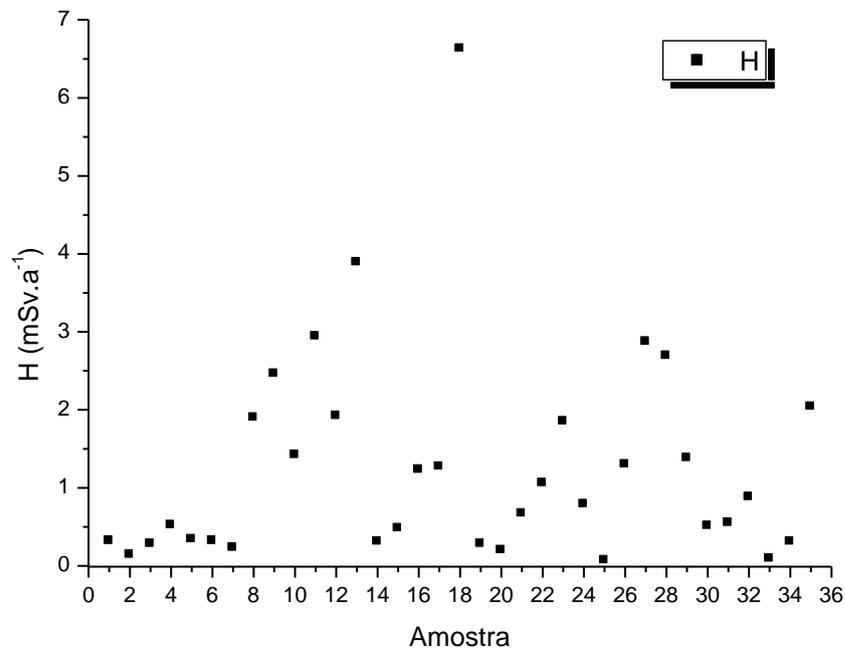
*<http://www.handbookofmineralogy.org>

5.3 PARÂMETROS RADIOMÉTRICOS

5.3.1 Taxa de Dose Equivalente Efetiva Ambiental (H)

O contexto avaliativo radiométrico da área de estudo, inicia-se com uma abordagem aos níveis da taxa de dose equivalente efetiva ambiental (H), calculados conforme a Equação 15, considerando um fator de ocupação de 0,2 recomendado pela UNSCEAR (2008) para ambientes externos, também chamados *outdoor*. Para este item, descrito na Tabela 8 presente no início deste capítulo, os dados obtidos variaram de 0,07 a 6,63 mSv.a⁻¹, com valor médio de 1,26 mSv.a⁻¹ e estão representados na Figura 21.

Figura 21 - Níveis de Taxa de Dose Equivalente Efetiva a 1 m da superfície (H)



De acordo com a UNSCEAR (2008), a taxa média de dose equivalente efetiva ambiental é de 0,07 mSv.a⁻¹ para radiação terrestre externa em ambientes ao ar livre. Em 97,1% das amostras analisadas, os resultados obtidos neste estudo são superiores a este valor, excetuando-se 1 amostra, que apresentou taxa de dose equivalente efetiva igual à referência.

sugerida pela UNSCEAR que é: N° 25, coletada no município de Parelhas/RN, na proximidade do Açude Boqueirão, em uma pedreira.

Ao analisar estes dados, considerando as recomendações da publicação N° 103 da Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP), de 2007, onde o limite de exposição à radiação total para os indivíduos do público é de $1,0 \text{ mSv.a}^{-1}$, observa-se que, nas amostras avaliadas, o referido limite é superado em 2,9% das ocorrências, principalmente naquelas localizadas nos municípios paraibanos de Santa Luzia, São Mamede, onde foram identificados níveis de dose quase 2 vezes superiores ao limite recomendado, além de parte dos afloramentos monitorados em São José do Sabugi.

Após a realização de ajuste matemático à classificação de áreas proposta por Sohrabi (2013), tem-se agora como referência comparativa apenas a taxa média de dose equivalente efetiva ambiental ($0,07 \text{ mSv.a}^{-1}$) para radiação terrestre externa em ambientes ao ar livre, reportada pela UNSCEAR. Ao considerar tal referencial, os dados elencados no presente estudo podem ser classificados da seguinte forma: 37,1% como sendo áreas com "nível médio" de radiação, com destaque para o município de Jardim do Seridó/RN; 28,6% definidas como "nível muito alto", destacando-se as ocorrências localizadas nos municípios paraibanos de São Mamede, Santa Luzia e São José do Sabugi, estes, que também apresentam destaque na categoria "nível alto", onde 25,7% das amostras totais podem ser enquadradas.

O "nível baixo", por sua vez, foi o que apresentou o menor índice de amostras aptas a receber tal qualificação (8,6%), com ocorrências pontuais nos municípios de São José do Sabugi/PB, Santana do Seridó/RN e Parelhas/RN, estes últimos, com amostras cujos níveis de atividades específicas foram os menores registrados. Esta variação nos níveis de dose conforme a atividade específica que a origina é algo esperado, já que, conforme Al-Kaabi (2016), quanto maiores os níveis de atividade específica do radionuclídeo na área da amostra, maiores serão suas doses; o mesmo ocorrendo para atividades específicas baixas.

A classificação das localidades aqui sugerida, considerando unicamente a taxa de dose equivalente efetiva referente à exposição externa, vem ao encontro das características mineralógicas locais outrora relatadas, onde se identificou a presença de minerais de caráter radioativo como a allanita, zircão, monazita e rutilo, inclusos em biotitas, além do epidoto e feldspato potássico. Todos eles, identificados em amostras cujas taxas de dose qualificam suas respectivas áreas de origem entre os níveis "alto" e "muito alto" da classificação sugerida no presente estudo. Tais evidências reforçam a necessidade e importância, não apenas da presente investigação, como de outras pesquisas com maior amplitude e detalhamento, envolvendo até a análise de outras matrizes ambientais, possibilitando a previsão de qualquer

situação que possa inferir algum risco às populações locais, em especial, nas localidades Riacho da Serra, em São José do Sabugi/PB, Serra dos Porcos, em Santa Luzia/PB e no município de São Mamede/PB, onde as maiores taxas de dose foram identificadas.

5.3.1.1 Taxa de Dose Equivalente Efetiva Ambiental (H) - Análise Intercomparativa utilizando Estudos Mundiais.

Na Tabela 11, é apresentado um comparativo entre os resultados da taxa de dose equivalente efetiva obtidos neste estudo e alguns estudos realizados em algumas áreas do planeta, utilizando rochas, aferindo a dosimetria para os radionuclídeos primordiais em ambientes externos, buscando verificar a exposição terrestre externa ao corpo humano em ambientes ao ar livre.

A comparação mostra que, os níveis observados no presente estudo apresentam relevante diferença quando comparados aos níveis de outras áreas. Essa diferença evidencia-se nos valores máximos de taxas de doses, impactando nos valores médios, que, em linhas gerais, apresentaram superioridade que variou entre 1,2 vezes, como na comparação com o estudo conduzido por Gaafar e colaboradores (2016), realizado em área considerada de alta radiação de fundo, cuja taxa de dose equivalente efetiva média foi de $1,05 \text{ mSv.a}^{-1}$, até 21 vezes superior, quando comparado com o estudo realizado por Bachama e colaboradores (2017), onde a referida taxa de dose média foi de $0,06 \text{ mSv.a}^{-1}$, inferior ao valor de referência adotado pela UNSCEAR.

Tabela 11 - Comparativo entre os dados médios da Taxa de Dose Equivalente Efetiva: Presente estudo *versus* estudos mundiais.

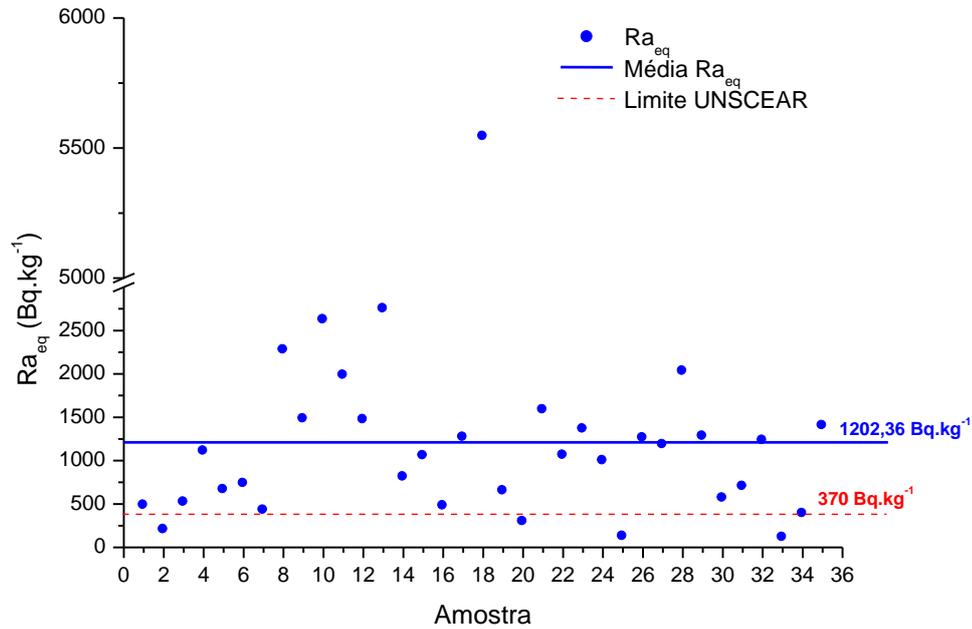
Localidade	H (mSv.a^{-1})	Referência
Paraíba e Rio Grande do Norte, Nordeste Brasileiro	1,26 (0,07 - 6,63)	Presente Estudo
Valor de Referência Mundial	0,07 ^a	Conforme Legenda
Nigéria	0,06 (0,05 - 0,07)	Bachama et al., 2017
Egito	1,05 (0,53 - 1,8)	Gaafar et al., 2016
Índia	0,131 (0,101 - 0,153)	Rangaswamy et al., 2016
Egito	0,13 (0,08 - 0,20)	Darwish; Abul-Nasr; El-Khayatt. 2015
Malásia	0,06 (0,005 - 0,138)	Alnour et al., 2014
Turquia	0,35 (0,21 - 0,88)	Canbaz et al., 2010

Legenda: ^aUNSCEAR, 2008.

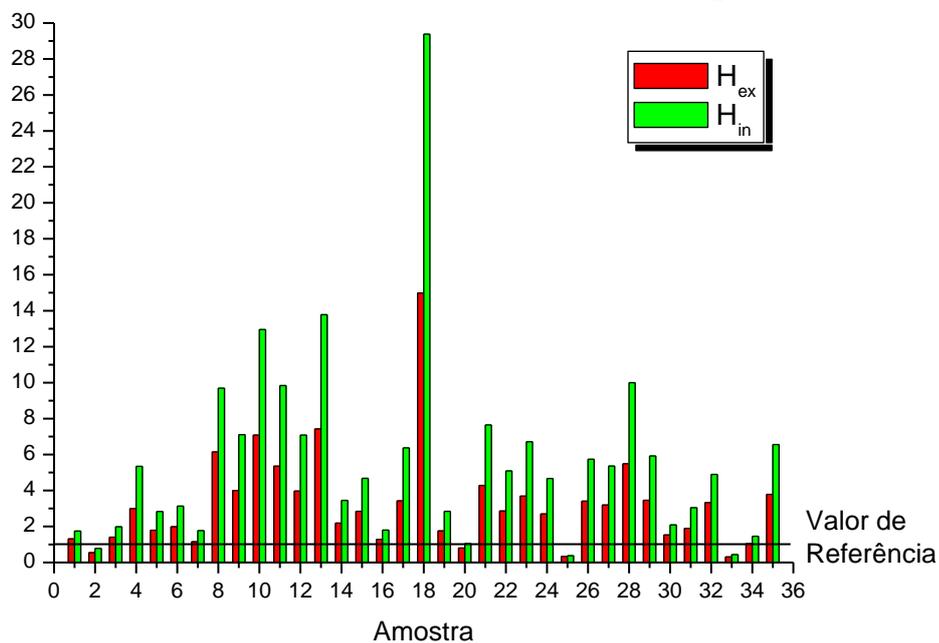
5.3.2 Rádio Equivalente (R_{eq}) e Índices de Risco de Radiação Externa (H_{ex}) e Interna (H_{in})

Prosseguindo a avaliação radiométrica da área de estudo, são abordados os dados referentes ao rádio equivalente (R_{eq}) e aos índices de risco de radiação externa (H_{ex}) e interna (H_{in}). Com relação ao R_{eq} , os valores obtidos variaram entre 113,2 a 5.543,6 Bq.kg⁻¹. Para tais valores, em níveis médios, o ²²⁶Ra apresentou uma contribuição de 73,8%, seguido dos elementos da série do ²³²Th, com 18,2% e do ⁴⁰K, com 8%, divergindo, por exemplo, das contribuições percentuais esperadas para o Ra, Th e K de 39,89%, 57,04% e 3,07%, respectivamente, considerando a equação utilizada na estimativa do R_{eq} .

A comparação dos valores empíricos com o recomendado pela UNSCEAR, que é de 370 Bq.kg⁻¹, conforme a Figura 22, demonstra que, 88,6% dos pontos amostrais apresentaram R_{eq} superior ao recomendado, índice muito superior a alguns registros da literatura, como por exemplo, estudo realizado por Fares e colaboradores (2017), em montanhas graníticas na costa do mar velho, no Egito, cujo rádio equivalente variou de 116,8 Bq.kg⁻¹ a 449,4 Bq.kg⁻¹, dos quais 16,7% das amostras apresentaram valores superiores ao limite recomendado; estudo conduzido por Alnour e colaboradores (2014), em amostras de rocha em Johor, Malásia, onde o rádio equivalente obtido variou entre 9 a 239 Bq.kg⁻¹ e a totalidade das amostras avaliadas apresentaram valor inferior ao limite recomendado; em outro estudo, onde Moura et al. (2011), registraram em amostras de rochas ígneas dos Estados de São Paulo e Minas Gerais níveis de rádio equivalente variando de 57,2 Bq.kg⁻¹ a 752,8 Bq.kg⁻¹, dos quais 36% com valores superiores ao recomendado. Pesquisa realizada por Santos Júnior et al. (2010), em amostras ambientais de solo e rocha de uma área anômala em urânio, em Pedra, Pernambuco, o rádio equivalente estimado, variou de 36,3 a 1.624,0 Bq.kg⁻¹ para as rochas graníticas e de 16.979,9 a 147.159,0 Bq.kg⁻¹ para as rochas cálciossilicáticas anfíbolíticas, onde cerca de 23% dos valores encontrados estiveram superiores ao referido limite.

Figura 22 - Níveis de Rádio Equivalente para os Pontos Monitorados

Quanto aos índices de risco de radiação externa (H_{ex}) e interna (H_{in}), os dados obtidos para o presente estudo são apresentados na Figura 23. Para o H_{ex} , os valores variaram entre 0,3 a 14,9, com valor médio de 3,25, enquanto que, para o H_{in} , estiveram entre 0,38 a 29,37, com valor médio de 5,65. Verifica-se que, em 88,6% das amostras, os valores determinados para tais índices são superiores ao limite, chegando a superá-lo em até quase 15 vezes, no caso do H_{ex} , e em até 29 vezes, com relação ao H_{in} , ambos na amostra 18, anteriormente discutida.

Figura 23 - Índices de risco de radiação externa (H_{ex}) e interna (H_{in}) para os Pontos Monitorados

5.3.2.1 R_{aeq} , H_{ex} e H_{in} - Análise Intercomparativa utilizando Estudos Mundiais

Na Tabela 12, é apresentado um comparativo entre os resultados médios dos parâmetros dosimétricos avaliados obtidos neste estudo e alguns estudos realizados em algumas áreas do planeta. A análise comparativa demonstra, de maneira clara, a superioridade dos níveis de tais parâmetros observados neste trabalho, quando comparados aos de outras áreas. Tomando como referência os valores de referência mundiais (UNSCEAR, 2000; BERETKA; MATHEW, 1985) estabelecidos para o R_{aeq} , H_{in} e H_{ex} , os valores médios obtidos neste estudo apresentaram níveis 3,3; 5,6 e 3,2 vezes mais elevados, respectivamente.

Quando comparados aos registros da literatura, os valores médios obtidos nesta pesquisa estiveram entre 1,9 a 11,9 vezes superiores, considerando o R_{aeq} ; entre 2,4 e 16,6 vezes superiores, no caso do H_{in} e, para o H_{ex} , os valores deste estudo apresentaram superioridade à literatura entre 1,8 a 11,6 vezes. O estudo conduzido por Gaafar e colaboradores (2016) é o único, dentre os elencados nesta análise comparativa, cujos dados apresentaram valores médios aproximadamente 2 vezes superiores aos obtidos nesta pesquisa.

Tabela 12 - Comparativo entre os dados médios de H , R_{aeq} , H_{in} e H_{ex} : Presente estudo *versus* estudos mundiais.

Localidade	R_{aeq} ($Bq.kg^{-1}$)	H_{in}	H_{ex}	Referência
Paraíba e Rio Grande do Norte, Nordeste Brasileiro	1202,36 (113,16 - 5543,64)	5,65 (0,38 - 29,37)	3,25 (0,30 - 14,98)	Presente Estudo
Valor de Referência Mundial	370 ^b	1 ^b	1 ^a	Conforme Legenda
Nigéria	122,60 (100,72 - 147,14)	0,40 (0,35 - 0,50)	0,33 (0,27 - 0,39)	Bachama et al., 2017
Egito	286,13 (116,8 - 449,42)	1,33 (0,70 - 1,92)	0,81 (0,43 - 1,14)	Fares et al., 2017
Egito	2160 (1030 - 3387)	11,4 (5,4 - 18,1)	5,8 (2,8 - 9,2)	Gaafar et al., 2016
Índia	225,29 (166,68 - 266,06)	0,73 (0,53 - 0,88)	0,62 (0,47 - 0,73)	Rangaswamy et al., 2016
Egito	231 (152,8 - 343,6)	0,74 (0,39 - 1,16)	0,62 (0,35 - 0,93)	Darwish; Abul-Nasr; El-Khayatt. 2015
Malásia	100,73 (9 - 239)	0,34 (0,03 - 0,84)	0,28 (0,02 - 0,66)	Alnour et al., 2014
Turquia	639,87 (368,3 - 1614,2)	2,36 (1,3 - 6,1)	1,76 (1,0 - 4,4)	Canbaz et al., 2010

Legenda: ^aUNSCEAR, 2008 / ^bBeretka; Mathew, 1985.

A avaliação dos parâmetros dosimétricos em questão (R_{aeq} , H_{ex} e H_{in}) indica a presença de comportamento semelhante de seus resultados, evidenciado nos níveis obtidos

para cada amostra e confirmado nos elevados coeficientes de correlação de Pearson registrados (r entre 0,9972 e 1, p -valor $< 0,0001$, confiança de 95%). Os níveis obtidos para tais parâmetros nas amostras avaliadas, em geral, são fortemente superiores aos limites recomendados ($R_{a_{eq}} = 370 \text{ Bq.kg}^{-1}$; H_{ex} e $H_{in} \leq 1$) e indicam risco relevante associado à radioatividade nestas áreas, conforme expresso pela literatura (UNSCEAR, 2000; RANGASWAMY et al., 2016). Desta forma, é desaconselhável usar essas rochas na construção civil ou indústria, tomando como base para tal recomendação o princípio de proteção radiológica, propondo condições de segurança para habitantes de possíveis residências que venham a ser construídas com esse tipo de material.

6 CONCLUSÕES E RECOMENDAÇÕES

1. Os radionuclídeos analisados no presente estudo (^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K) apresentam, em linhas gerais, níveis de atividades específicas, teores e parâmetros radiométricos, superiores aos valores de referência relatados pela UNSCEAR e a maioria dos registros existentes na literatura.
2. Os resultados mais elevados para os itens supramencionados, foram obtidos em afloramentos rochosos situados nos municípios paraibanos de São Mamede, Santa Luzia, São José do Sabugi e, em ponto específico, no município de Carnaúba dos Dantas/RN.
3. Nas localidades supracitadas, as amostras podem ser classificadas como de níveis "alto" e "muito alto" de radioatividade natural, considerando como referência a Taxa Média de Dose Equivalente Efetiva Ambiental para ambientes "outdoor".
4. A presença de minerais como a allanita, monazita, zircão, rutilo, biotita e feldspato potássico justifica a existência dos níveis de radioatividade diferenciados para os radionuclídeos monitorados na área de estudo.
5. É desaconselhada, *a priori*, a utilização das rochas analisadas, como componente em materiais de construção e utensílios domésticos, dado o risco radiológico a elas associado, diante dos parâmetros dosimétricos avaliados.

REFERÊNCIAS

- ABRÃO, A. **Química e tecnologia das Terras Raras**. Série da Tecnologia Mineral, n° 66 CETEM/CNPq, Rio de Janeiro, 1994.
- ADUSUMILLI, M. S.; DE CASTRO, C. (1990). **Uranium minerals from Boqueirao and Marnoes pegmatites, Rio Grande do Norte**. Paper presented at the XXXVI Congresso Brasileiro de Geologia, Natal, 28 Oct.- 1 Nov. Boletim de Resumo, p. 227 (in Portuguese).
- ALBERT, R. E. **Thorium - its industrial hygiene aspects**. New York, NY: Academic, 1966.
- ALENCAR, A. S.; FREITAS, A. C. Reference levels of natural radioactivity for the beach sands in a Brazilian southeastern coastal region. **Radiation Measurements**. v. 40, p. 76-83, 2005.
- AL-HAMARNEH, I.F.; AWADALLAH, M.I. Soil radioactivity levels and radiation assessment in the highlands of Northern Jordan. **Radiat. Meas.** v. 44, p. 102-110, 2009.
- ALIYU, A. S.; RAMLI, A. T. The world's high background natural radiation areas (HBNRAs) revisited: A broad overview of the dosimetric, epidemiological and radiobiological issues. **Radiation Measurements**. v. 73, p. 51-59, 2015.
- AL-KAABI, M. A.; AL-SHIMARY, A. Study of the Radiological Doses and Hazard Indices In Soil Samples From Karbala City, Iraq. **Chinese Physics**. v. 16, p. 331-347, 2016.
- ALMEIDA, F. F. M. de; HASUI, Y.; NEVES, B. B. B.; FUCK, R. A. Províncias estruturais brasileiras. In: SIMPÓSIO DE GEOLOGIA DO NORDESTE, 8., 1977, Campina Grande, PB. **Atas...** Campina Grande: SBG Núcleo Nordeste, 1977. p. 363-391.
- AMARAL, R. S. **Dose na População da Região Urano-fosfática Pernambucana, devido à presença de Urânio e ²²⁶Ra nos Cultivares**. 1994. 143p. Tese (Doutorado em Ciências), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 1994.
- ANJOS, S.M.C.; DE ROS, L.F. Técnicas de análise utilizadas na petrologia sedimentar da PETROBRAS. In: SBG, Congresso Brasileiro de Geologia, 36, 1990, Natal, **Boletim de Resumos**, 1990. p. 25-26.
- ANTONIASSI, J. L. **A Difração de Raios X com o método de Rietveld aplicada a Bauxitas de Porto Trombetas, PA**. 2010. 111p. Dissertação (Mestrado em Ciências), Departamento de Engenharia de Minas e de Petróleo, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2010.
- ARINE, B. B. R. **Melhoramento do Índice de Detecções na Espectrometria Gama em Amostras Ambientais usando Inteligência Artificial**. 2017. 151p. Dissertação (Mestrado em Diagnóstico, Tratamento e Recuperação Ambiental), Instituto de Ciência e Tecnologia (Campus de Sorocaba), Programa de Pós-Graduação em Ciências Ambientais, Universidade Estadual Paulista Júlio de Mesquita Filho - UNESP, Sorocaba-SP, 2017.

BENEDETTO, J. S. Nuclear Mineral Plants in Brazil - Case Studies. **Tsinghua Science and Technology**. 11(2): 217-221, 2006.

BERRY, L. G.; MASON, B. **Mineralogia**. 690p. Madrid: Aguillar, 1966.

BEZERRA, J. D. **Dosimetria Termoluminescente na Avaliação da Dose “indoor” das residências do Município de São José de Espinharas-PB**. 2015. 87p. Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2015.

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

BRADY, C. N.; WEIL, R. R. **Elementos da Natureza e Propriedades do Solo**. 3 ed. Bookman, p.716, 2013.

BRASIL. CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear. Departamento de Exploração Mineral. **Relatório de Atividades**. 1973, 131 p.

BRASIL. Resolução Nº. 2, de 28 de Agosto de 2018 - Estimativas da População, para Estados e Municípios. **Diário Oficial da União**. Edição Nº. 167, Seção 1, Páginas 66, 70 e 71, 29 de Agosto de 2018.

BRASIL. Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística – IBGE. **Censo Demográfico 2010**. Disponível em: < <http://www.censo2010.ibge.gov.br/sinopse/index.php?uf=24&dados=0>>. Acesso em 11, abril, 2016.

BUNCHAFT, G.; KELLNER, S. R. O. **Estatística sem mistérios**. V. I. 2.ed. Petrópolis: Vozes, 1997.

CANBERRA Industries Inc. **High Purity Germanium (HPGe) Detectors**. 2003.

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

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.

CASTRO, L. P. de; **Radionuclídeos naturais e ^{137}Cs em cogumelos comestíveis comercializados em São Paulo – Brasil**. 2008. 83p. Dissertação (Mestrado em Ciências na Área de Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo, São Paulo, 2008.

CASTRO, M. X. **Interpretação de Resultados de Monitoração Individual Interna de trabalhadores da Fábrica de Combustível Nuclear - FCN**. 2005. 171p. Dissertação (Mestrado em Radioproteção e Dosimetria), Instituto de Radioproteção e Dosimetria, Rio de Janeiro, 2005.

CHARFUELÁN, J. M. J. **Caracterização de Material Radioativo de Ocorrência Natural (NORM) no Município de São Mamede - Paraíba.** 2014. 81p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014.

COSTA, A. C.; PEDROSA, I. L.; MENDES, V. A. Projeto Agreste de Pernambuco. Convênio DNPM/CPRM, 1976.

CPRM - Companhia de Pesquisas e Recursos Minerais - Serviço Geológico do Brasil. **Projeto cadastro de fontes de abastecimento por água subterrânea no Estado de Pernambuco** - Diagnóstico do Município de Pedra. 2005, 22 p.

CRESSWELL, A. J.; SANDERSON, D. C. W. Evaluating airborne and ground based gamma spectrometry methods for detecting particulate radioactivity in the environment: A case study of Irish Sea beaches. **The Science of the Total Environment**, v.437, p.285-297, 2012.

CURRIE L. A.. Limits for qualitative detection and quantitative determination, application to radiochemistry. *Analytical Chemistry*. v.40, p.586 – 593, 1968.

DAMASCENA, K. F. R.; AMARAL, R. S.; SANTOS JÚNIOR, J. A.; GENEZINI, F. A.; SILVA, A. A.; MENEZES, R. S. C. Rare-earth elements in uranium deposits in the municipality of Pedra, Pernambuco, Brazil. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. 304: 1053-1058, 2015.

DEPARTAMENTO NACIONAL DE PRODUÇÃO MINERAL (DNPM). **Mineração no Semiárido Brasileiro.** Brasília, p. 201, 2009.

DERIN, M.T.; VIJAYAGOPAL, P.; VENKATRAMAN, B.; CHAUBEY, R.C.; GOPINATHAN, A. Radionuclides and radiation Indices of high background radiation area in Chavara-Neendakara Placer deposits (Kerala, India). **Plos One**, 7(11): 1-8, 2012.

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.

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

EMBRAPA – Empresa Brasileira de Pesquisa Agropecuária. Embrapa Solos. Ministério da Agricultura, Pecuária e Abastecimento. **Sistema Brasileiro de Classificação de Solos.** 3ª Edição Revista e Ampliada. 353p. Brasília, DF: Embrapa, 2013.

FERREIRA, A. O. **Distribuição de radionuclídeos em um afloramento de sedimentos permianos da formação iratí na bacia do Paraná.** 2008. 110p. Dissertação (Mestrado em Física), Universidade Estadual de Londrina, Centro de Ciências Exatas, Programa de Pós-Graduação em Física, Londrina, 2008

FERREIRA, M. D. C. **Estudo da Eficiência de um Detector HPGe por Métodos Semiempíricos e Experimental.** 2012. 78p. Dissertação (Mestrado em Ciências), Comissão Nacional de Energia Nuclear, Centro de Desenvolvimento da Tecnologia Nuclear, Belo Horizonte, 2012.

FIRESTONE, R.B.; SHIRLEY, V.S.; CHU, S.Y.F.; BAGLIN, C. M. ZIPKIN, J. Table of isotopes. U.S.: Wiley-Interscience. Versão 1.0, **CD ROM**, 1996, 14.193 p.

FORMOSO, M.L.L. Difractometria de raios X. In: FORMOSO, M.L.L. et al. **Técnicas analíticas instrumentais aplicadas à geologia**. São Paulo: Edgar Blücher / Prominério, 1984. p. 1-43.

GARCÊZ, R. W. D. **Determinação das Atividades Específicas de ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{40}K em Amostras de Fertilizantes Minerais**. 2016. 59p. Dissertação (Mestrado em Engenharia Nuclear, Programa de Pós-Graduação em Engenharia Nuclear - COPPE, Universidade Federal do Rio de Janeiro, Rio de Janeiro, 2016.

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

GOMES, L. F. **Uso de um Misturador-Decantador na Purificação de Tório proveniente do Hidróxido de Tório Bruto**. 2004. 113p. Dissertação (Mestrado em Ciências – Área de Tecnologia Nuclear - Materiais), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2004.

GOOGLE SITES – MINERAIS E ROCHAS MAGMÁTICAS. **Petrografia Microscópica**. Disponível em: <<https://sites.google.com/site/mundodasrochas/curiosidades>>. Acesso em: 02 de julho de 2019.

HASUI, Y.; CARNEIRO, C. D. R.; ALMEIDA, F. F. M.; BARTORELLI, A. 2012. **Geologia do Brasil**. Beca: São Paulo, pg. 260-261, 2012.

HIRAYAMA, T. **Estimativa da Carga Corporal de Urânio e Dose Equivalente concomitada à partir dos resultados de análises radiotoxicológicas de urina**. 1978. 141p. Dissertação (Mestrado em Ciências – Área de Tecnologia Nuclear), Instituto de Energia Atômica, Universidade de São Paulo, São Paulo, 1978.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). **Guidelines for Radioelement Mapping Using Gamma Ray Spectrometry Data**. IAEA Publication, Technical Report: TECDOC 1363, ISSN 1011-4289, Viena, p. 179, 2003.

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

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA). X ray and gamma-ray standards for detector calibration. IAEA publication, technical report: **TECDOC 619**, INSS 1011-4289, Vienna, 1991. 157p.

INTERNATIONAL CENTRE FOR DIFFRACTION DATA (ICDD). Apresenta informações sobre missão, pesquisas, produtos desenvolvidos, etc. Disponível em: <www.icdd.com>. Acesso em: agosto 2018.

INTERNATIONAL COMMISSION RADIATION PROTECTION (ICRP). **Protection Against ^{222}Rn at Home and at Work**. ICRP Publication 65, Annals of the ICRP 23, 1993.

INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION (ICRP). Alkaline earth metabolism in adult man. *ICRP Publication 20*. Pergamon Press, Oxford, 1973.

JENKINS, R. Instrumentation. In: BISH, D.L.; POST, J.E. (Ed.). **Modern powder diffraction**. Washington: Mineralogy Society of America, 1989. p. 19-43. (Reviews in Mineralogy, v. 20).

JENKINS, R.; SNYDER, R.L. **Introduction to x-ray powder diffractometry**. New York: John Wiley, 1996. 403 p. (Chemical Analysis, v. 138).

KAHN, H. **Difração de Raios X**. 2000. 18 p. Disponível em: <http://www.angelfire.com/crazy3/qfl2308/1_multipart_xF8FF_2_DIFRACAO.pdf>. Acesso em: 21, setembro, 2017.

KASTE, J. M.; BOSTICK, B. C.; HEIMSATH, A. M. Determining ²³⁴Th and ²³⁸U in rocks, soils, and sediments via the doublet gamma at 92.5 keV. **Analyst**. 131: 757-763, 2006.

KASTNER, G. **Estudo do Desequilíbrio Radioativo de Minerais**. [1999]. Disponível em: <<https://www.ipen.br/biblioteca/cd/inac/1999/PDF/CG16BL.PDF>>. Acesso em: 24, abril, 2019.

KERUR, B.; RAJESHWARI, T.; ANILKUMAR, S.; NARAYANI, K.; REKHA, A. Gamma spectrometric analysis of ore samples from Sandur of Bellary, Karnataka, India. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**.v.294(2), p.191-196, 2012.

KHAN, A. J.; SEMKOW, T. M.; BEACH, S. E.; HAINES, D. K.; BRADT, C. J.; BARI, A.; SYED, U. F.; TORRES, M.; MARRANTINO, J.; KITTO, M. E.; MENIA, T. FIELMAN, E. Application of low-background gamma-ray spectrometry to monitor radioactivity in the environment and food. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 90, p. 251 - 257, 2014.

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and Measurement**. 3^a ed., New York: John Wiley & Sons, p. 754, 1989.

KNOLL, G. F. **Radiation Detection and Measurement**. 802p. John Wiley & Sons, 2000.

KORUN, K.; VODENIK, B.; ZORKO, B. Calculation of the decision thresholds in gamma-ray spectrometry. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 94, p. 221 - 229, 2014.

LIDE, D. R. **Handbook of Chemistry and Physics**. CRC Press, 86 ed., 2005.

LIMA, R. B. **Avaliação Experimental do Fluxo de Nêutrons de um Irradiador com Fontes de AmBe e sua Possibilidade de uso em Análise de Materiais**. 2003. 51p. Dissertação (Mestrado em Ciências – Área de Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo, São Paulo, 2003.

LIRA, B.B.; RODRIGUES, G.; CAVALCANTI FILHO, L.L.; MADEIRA, V. S.; COMBOIM, J. E. L. Estudo dos Pegmatitos da Província da Borborema – Paraíba: Minerais e Minérios de Interesse Tecnológico. **Tecnol. Metal. Mater. Miner.** 13(1): 113-119, 2016.

LUCAMBIO, F. **Diferentes Testes para Verificar Normalidade de uma Amostra Aleatória**. Departamento de Estatística. Universidade Federal do Paraná. 5p. Curitiba, 2008.

MACIEL, A. C. & CRUZ, P. R. (1973). **Analytical Profile of Uranium**. Ministry of Mines and Energy (DNPM, Bol. 27, Rio de Janeiro, p. 19 (in Portuguese).

MACIEL, A. C.; CRUZ, P. R. **Perfil Analítico do Tório e Terras Raras**. Ministério das Minas e Energia. Departamento Nacional da Produção Mineral (DNPM). Boletim Nº 28. 72p. Rio de Janeiro, 1973.

MADUAR, M. F. **Desenvolvimento de um Código Computacional Aberto de Análise Quantitativa para Determinação de Radionuclídeos por Espectrometria Gama com Detectores Semicondutores**. 2010. 88p. Tese (Doutorado em Ciências – Área de Tecnologia Nuclear), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN), Universidade de São Paulo, São Paulo, 2010.

MAFRA, O. Y. **Técnicas de Medidas Nucleares**. 1 ed. São Paulo: Edgard Blucher, Editora da Universidade de São Paulo, p. 110, 1973.

MAHAN, B. H. **Química: um Curso Universitário**. 4 ed. São Paulo: Edgard Blucher, p.452, 1995.

MALANCA, A.; GAIDOLFI, L. Environmental radon in some Brazilian towns and mines. **Radiation Protection Dosimetry** 69(3): 211 - 216, 1997.

MALANCA, A.; GAIDOLFI, L. Preliminary radiological survey in some towns of the northeastern Brazilian Sertão. **Nucleus** 33(3): 139 - 144, 1996.

MALANCA, A.; GAIDOLFI, L.; PESSINA, V.; DALLARA, G. Distribution of ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K in Soils of Rio Grande do Norte (Brazil). **Journal of Environmental Radioactivity**. v. 30, n. 1, p. 55-67, 1996.

MALANCA, A.; PESSINA, V.; DALLARA, G. Assessment 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.

MENEZES, M. R. F. **Estudos Sedimentológicos e o Contexto Estrutural da Formação Serra do Martins, nos Platôs de Portalegre, Martins e Santana/RN**. 1999. 184p. Dissertação (Mestrado em Geodinâmica), Centro de Ciências Exatas e da Terra, Programa de Pós-Graduação em Geodinâmica e Geofísica, Universidade Federal do Rio Grande do Norte, Natal, 1999.

MOHANTY, A.K.; SENGUPTA, D.; DAS, S.K.; VIJAYAN, V.; SAHA, S.K. Natural radioactivity in the newly discovered high background radiation area on the Eastern Coast of Orissa, India. **Radiat. Meas.** 38: 153-165, 2004.

MORAIS, E. N. L. **Levantamento da Pluma Gama Natural Gerada pela Extração de Fosfato em Cidades do Norte da Região Metropolitana do Recife**. 2013. 46p. Dissertação

(Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2013.

MOREIRA, D. S. **Padronização dos Radionuclídeos Multi-emissores Gama ^{166m}Ho e ^{72}Ga e Determinação de suas Intensidades Gama por Decaimento.** 2005. 125p. Tese (Doutorado em Ciências – Área de Tecnologia Nuclear - Aplicações), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2005.

MOURA, C. L.; ARTUR, A. C.; BONOTTO, D. M.; GUEDES, S.; MARTINELLI, C. D. Natural Radioactivity and radon exhalation rate in Brazilian igneous rocks. **Applied Radiation and Isotopes**, v. 69, p.1094-1099, 2011.

MUSA, M. A.; FUNTUA, I. I.; MALAN, S. P.; ARABI, A. S. Determination of Absorbed and Effective Dose from Natural Background Radiation around a Nuclear Research Facility. **American Journal of Environmental Sciences**. v. 7(2), p. 173-177, 2011.

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

OLIVEIRA, J. **Determinação dos Níveis de Radioatividade Natural em Águas utilizadas para abastecimento público no Estado de São Paulo.** 1998. 180p. Tese (Doutorado em Ciências – Área de Tecnologia Nuclear - Aplicações), Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, São Paulo, 1998.

OLIVEIRA, L. A. M.; SOUZA, A. E. **Balanco Mineral Brasileiro.** Potássio. p. 1 - 17, 2001. Disponível em: <<http://www.dnrm.gov.br/dnrm/paginas/balanco-mineral/arquivos/balanco-mineral-brasileiro-2001-potassio>>. Acesso em 14, Setembro, 2018.

PAPACHRISTODOULOU, C. A.; ASSIMAKOPOULOS, P. A.; PATRONIS, N. E.; IOANNIDES, K. G. Use of HPGe gamma-ray spectrometry to assess the isotopic composition of uranium in soils. **Journal of Environmental Radioactivity**. 64(2-3): 195-203, 2003.

PASCHOA, A. S. Formação de Pessoal e Estudos Radioecológicos para o Programa Nuclear Brasileiro. **Brazilian Journal of Physics**, v. 06, p. 984, 1976. Disponível em: <<http://www.sbfisica.org.br/bjp/download/v06e/v06a105.pdf>>. Acesso em 14, Maio, 2015.

PEIXOTO, E. M. A. Potássio. **Química Nova na Escola**, N°. 19, pág. 47, Maio, 2004.

PETTIJOHN, F.F.; POTTER, P.E.; SIEVER, R. 1973. **Sand and sandstone.** New York. Springer Verlag. 618p.

PICCOLI, R.; NASCIMENTO, G. C.; VITORETTI, P. P.; WERNECK, A. S. W. (2009). **A Importância da Utilização da Difração de Raios X na Caracterização de Argilas.** 53º Congresso Brasileiro de Cerâmica, Volume 42 (48), 8p, Código 01-062. 2009.

RIBAS, R. V. **Instrumentação Nuclear.** 38p. Instituto de Física, Departamento de Física Nuclear, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2011.

RIBEIRO, V. B.; MANTOVANI, M. S. M.; LOURO, V. H. A. Aerogamaespectrometria e suas aplicações no mapeamento geológico. **Terrae Didactica**. 10: 29-51, 2013.

ROWLAND, RE.; STEHNEY, A.F.; LUCAS, H.F. Dose-response relationships for radium-induced bone sarcomas. *Health Phys.*, 44(Supplement 1): 15-31, 1983.

SANTOS JÚNIOR J. A. **Avaliação radiométrica do U-238, Ra-226, Th-232 e K-40 em uma área anômala do agreste de Pernambuco.** 2009. 139p. Tese (Doutorado em Ciências. Área de Concentração: Dosimetria e Instrumentação), Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2009.

SANTOS JÚNIOR J. A. **Migração de urânio e rádio-226 no solo em torno da ocorrência uranífera do município de Pedra - PE.** 2005. 89p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear, Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2005.

SANTOS JÚNIOR, J. A.; AMARAL, R. S.; SILVA, C. M.; MENEZES, R. S. C.; BEZERRA, J. D. Estudo comparativo entre os detectores HPGe e NaI(Tl) na determinação de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K em amostras de solo. **Scientia Plena.** v. 5, N. 4, p. 1-16, 2009.

SANTOS JÚNIOR., J. A.; CARDOSO, J. J. R. F.; SILVA, C. M.; SILVEIRA, S. V.; AMARAL, R. S. Determination of radionuclides in the environment using gamma spectrometry. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry.** v. 269, n. 2, p. 451-455, 2006.

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

SILVA, A. L. **Caracterização Mineralógica por Difração de Raios X e Determinação de Terras Raras por ICP-MS de Rochas da Região Sul da Bahia.** 2013. 100p. Dissertação (Mestrado em Ciências e Técnicas Nucleares), Escola de Engenharia, Departamento de Engenharia Nuclear, Programa de Pós-Graduação em Ciências e Técnicas Nucleares, Universidade Federal de Minas Gerais, Belo horizonte, 2013.

SILVA, A. A. da. **Dosimetria Radioecológica na Ocorrência Uranífera de São José de Espinharas – PB.** 2014. 59p. Dissertação (Mestrado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear (DEN), Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2014.

SILVA, A. A. da. **Avaliação radiométrica em água subterrânea consumida pela população em municípios das mesorregiões da Borborema, Central Potiguar e Sertão Paraibano.** 2018. 91p. Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Departamento de Energia Nuclear (DEN), Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2018.

SILVA, S. M. P.; CRÓSTA, A. P.; FERREIRA, F. J. F.; BEURLIN, H.; SILVA, A. M.; SANTOS, L.F. Espectrometria de Raios Gama de Granitos Pegmatíticos da Província Pegmatítica da Borborema (PPB), Nordeste do Brasil. **Revista Brasileira de Geofísica.** v. 28(4), p. 673-690, 2010.

SINGH, S.; RANI, A.; MAHAJAN, R. K. ^{226}Ra , ^{232}Th and ^{40}K analysis in soil samples from some areas of Punjab and Himachal Pradesh, India using gamma ray spectrometry. **Radiation Measurements**. v. 39, p. 431-439, 2005.

SIVERS, M. V.; HOFMANN, M.; MANNEL, T.; FEILITZSCH, F. V.; OBERAUER, L.; POTZEL, W.; SCHONERT, S. Low-level γ -ray spectrometry at the underground laboratory Garching. **Applied Radiation and Isotopes**. v. 91, p. 49 - 56, 2014.

SOHRABI, M. World high background natural radiation areas: Need to protect public from radiation exposure. **Radiation Measurements**. v. 50, p. 166-171, 2013.

SOUZA, F. **Determinação das Concentrações de atividade de ^{234}U e ^{238}U em águas subterrâneas de três poços perfurados em rochas da Suíte Intrusiva de Itu (SP)**. 2006. 106p. Dissertação (Mestrado em Ciências – Área de Concentração: Geofísica), Instituto de Astronomia, Geofísica e Ciências Atmosféricas, Universidade de São Paulo, São Paulo, 2006.

SOUZA, E. M.; FARIAS, E. E.; SILVA FILHO, C. A.; VILLAR, H. P.; FRANÇA, E. J.; HAZIN, C. A. Ocorrência de Urânio em Pocinhos, Paraíba - A Anomalia de Sítio Bravo: Petrografia e Radiometria. **Estudos Geológicos**. 22(2): 93-103, 2012.

SRILAHTA, M. C.; RANGASWAMY, D. R.; SANNAPPA, J. Measurement of natural radioactivity and radiation hazard assessment in the soil samples of Ramanagara and Tumkur districts, Karnataka, India. **Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry**. v. 303, p. 993-1003, 2015.

STRECKEISEN, A. Classification and Nomenclature of Plutonic Rocks. Recommendations of the IUGS Subcommittee on the Systematics of Igneous Rocks. **Geologische Rundschau**. v. 63(2): 773-786, 1974.

TRINDADE, I. R.; SÁ, J. M.; MACEDO, M. H. F. Comportamento de elementos químicos em rochas mineralizadas em ouro na Faixa Seridó, Província Borborema. **Revista Brasileira de Geociências**, v. 38(2): 303-318, 2008.

TYKUA, R.; BERG, D. **Man-Made and Natural Radioactivity in Environmental Pollution and Radiochronology**. Klywer Academic Publishers, p. 419, 2004.

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.

UNITED SCIENTIFIC COMMITTEE ON THE EFFECTS OF ATOMIC RADIATIONS (UNSCEAR). 2008. **Sources and Effects of Ionizing Radiation**. United Nations, New York, 2010.

UNSCEAR. **Sources and Effects of Ionizing radiation**. Report to General Assembly, with Scientific Annexes, United Nations, New York, 2000.

VASCONCELOS, D. C. **Estudo da Radioatividade Natural em areias de praias do extremo sul da Bahia utilizando Métodos de Análises Nucleares**. 2010. 124p. Tese (Doutorado em Ciências e Técnicas Nucleares – Área de Concentração: Ciências das

Radiações), Departamento de Engenharia Nuclear, Universidade Federal de Minas Gerais, Minas Gerais, 2010.

VIEIRA, M.M. **Parâmetros controladores da qualidade dos reservatórios profundos da Bacia de Sergipe-Alagoas**. 1991. 216p. Dissertação de Mestrado, Universidade Federal de Ouro Preto, Ouro Preto, 1991.

WANG, Q.; SONG, J.; LI, X.; YUAN, H.; LI, N.; CAO, L. Environmental radionuclides in a coastal wetland of the Southern Laizhou Bay, China. **Marine Pollution Bulletin**. v. 97, p. 506-511, 2015.

WILLIAMS, A.R.; KIRCHMANN, R.J. **Radium: a historical introduction**. In: The environmental behaviour of Radium. International Atomic Energy Agency. Technical Report Series, 310. Vol 1. c. 1-1. Vienna, 1990.

WINGE, M. et al. 2001 - 2019. **Glossário Geológico Ilustrado**. Disponível em: <<http://sigep.cprm.gov.br/glossario/verbete/petrologia.htm>>. Acesso em: 01, Julho, 2019.

XAVIER, A. M.; MORO, J. T.; HEILBRON, P. F. **Princípios Básicos de Segurança e Proteção Radiológica**. 3ª. Ed. 245p. Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Rio Grande do Sul, 2006.

YVES GILLOT, P.; HILDENBRAND, A.; LEFÈVRE, J. C.; ALBORE-LIVADIE, C. The K/Ar Dating Method: Principle, Analytical Techniques, and Application to Holocene Volcanic Eruptions in Southern Italy. **Acta Vulcanologica**. v. 18, p. 55-66, 2006. Disponível em:<https://www.academia.edu/2036679/THE_K_AR_DATING_METHOD_PRINCIPLE_ANALYTICAL_TECHNIQUES_AND_APPLICATION_TO_HOLOCENE_VOLCANIC_ERUPTIONS_IN_SOUTHERN_ITALY> . Acesso em: 22, novembro, 2018.

ZOU, J.; TAO, Z.; SUN, Q.; AKIBA, S.; ZHA, Y.; SUGAHARA, T.; WEI, L. Cancer and noncancer epidemiological study in the high background radiation area of Yangjiang, China. **Int. Congr. Ser.** 1276, 97-101, 2005.