

UNIVERSIDADE FEDERAL DE PERNAMBUCO
CENTRO DE TECNOLOGIA E GEOCIÊNCIAS
PÓS-GRADUAÇÃO EM GEOCIÊNCIAS

Christianne Torres de Paiva

**ESTUDO DA MOBILIDADE E DISPERSÃO DE ^{238}U ,
 ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn E METAIS PESADOS NO
SISTEMA SOLO-ROCHA DO DEPÓSITO DE U-ETR
DE SÃO JOSÉ DE ESPINHARAS (PB)**

Tese de Doutorado
2008

CHRISTIANNE TORRES DE PAIVA

Engenheira Florestal, Universidade Federal Rural de Pernambuco, 1991

Mestre, Universidade Federal Rural de Pernambuco, 1995

**ESTUDO DA MOBILIDADE E DISPERSÃO DE ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra E ^{222}Rn E
METAIS PESADOS NO SISTEMA SOLO-ROCHA DO DEPÓSITO DE U-ETR DE
SÃO JOSÉ DE ESPINHARAS (PB)**

Tese que apresenta à Pós-Graduação em Geociências do Centro de Tecnologia e Geociências da Universidade Federal de Pernambuco, orientada pelo Profº Dr. João Aduino de Souza Neto, como preenchimento parcial dos requisitos para obtenção do grau de Doutor em Geociências, área de concentração Geologia Sedimentar e Ambiental.

RECIFE, PE

2008

Catálogo na fonte
Bibliotecária Rosineide Mesquita Gonçalves Luz / CRB4-1361 (BCTG)

P149e Paiva, Christianne Torres de.

Estudo da mobilidade e dispersão de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e metais pesados no sistema solo-rocha do depósito de U-ETR de São José de Espinharas (PB) / Christianne Torres de Paiva. - Recife: O Autor, 2008.
223f., il., figs., tabs., gráfs.

Orientador: Prof. Dr. João Adauto de Souza Neto.

Co-Orientadora: Prof^a. Dr^a. Eliane Valentim Honorato.

Tese (Doutorado) – Universidade Federal de Pernambuco.
CTG. Programa de Pós-Graduação em Geociências, 2008.

Inclui Referências Bibliográficas e Anexos.

1. Geociências. 2. Geoquímica ambiental. 3. Radioatividade Natural. 4. Radionuclídeos 5. Metais Pesados I. Souza Neto, João Adauto (Orientador). II. Honorato, Eliane Valentim (Co-Orientadora) III. Título.

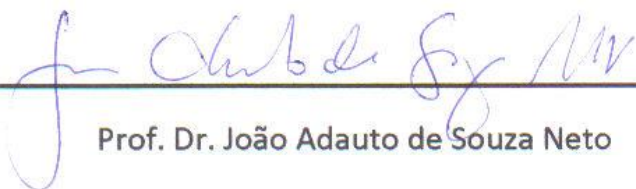
551 CDD (22.ed)

UFPE/BCTG-183/2011

**ESTUDO DA MOBILIDADE E DISPERSÃO DE ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra E ^{222}Rn E
METAIS PESADOS NO SISTEMA SOLO-ROCHA DO DEPÓSITO DE U-ETR DE
SÃO JOSÉ DE ESPINHARAS (PB)**

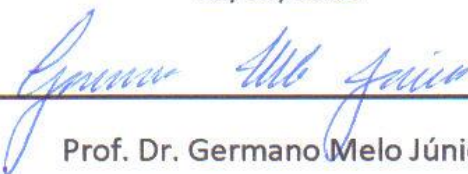
CHRISTIANNE TORRES DE PAIVA

Aprovada:



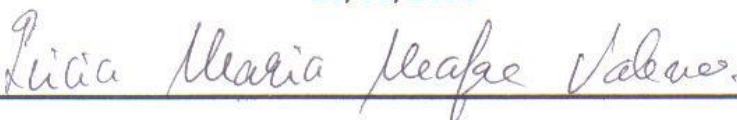
Prof. Dr. João Aauto de Souza Neto

26/09/2008



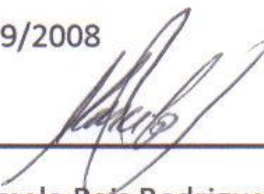
Prof. Dr. Germano Melo Júnior

26/09/2008



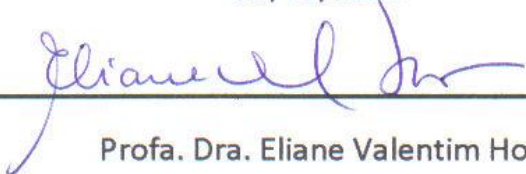
Profa. Dra. Lúcia Maria Mafra Valença

26/09/2008



Prof. Dr. Marcelo Reis Rodrigues da Silva

26/09/2008



Profa. Dra. Eliane Valentim Honorato

26/09/2008

À minha querida e amada filha Ana Sofia Torres
Barbosa, que me faz acreditar sempre em dias
melhores...

Dedico.

Aos meus pais, Antonio Torres da Silva e Bdenice de
Paiva Torres, como um tributo de honra, amor e
gratidão...

Ofereço.

“Tenha em mente que tudo o que você aprende na escola é fruto do trabalho de muitas gerações. Receba essa herança, honre-a, acrescente algo a ela e, um dia, fielmente, deposite-a nas mãos de seus filhos”.

(Albert Einstein, 1879-1955)

“Adquire a sabedoria. Ame-a, e ela te guardará; estime-a, e ela te exaltará; abrace-a, e ela te honrará”.

(Pv. 4:5a, 6b e 8).

AGRADECIMENTOS

Sou grata, sobretudo, ao Deus Eterno que me capacitou e fortaleceu ao longo desta jornada e ainda me reservou o privilégio de contar com as pessoas, recursos e instituições que mencionarei a seguir.

Ao meu Orientador e Mestre admirável, Profº Dr. João Adauto de Souza Neto, por quem tenho um profundo respeito e admiração pela capacidade profissional e ética. Sou grata pela sempre presente e firme orientação, por todo conhecimento compartilhado, pelas críticas e sugestões que foram um estímulo para alcançar um nível de excelência progressivo e constante e, pelo compromisso, confiança, honestidade e seriedade científica que sempre serão, para mim, um referencial acadêmico.

À minha Co-Orientadora Dra. Eliane Valentim Honorato, agradeço pela co-orientação e ajuda nas análises geoquímicas e radiométricas.

A todos os professores do Programa de Pós-Graduação em Geociências da UFPE pelos conhecimentos transmitidos, em especial, aos professores Lúcia Valença, Virgínio Neumann, Marcelo Rodrigues, Gorki Mariano, Valdir Manso e Alcina Barreto, agradeço pelas lições de solidariedade e ética que me ensinaram.

À Universidade Federal de Pernambuco, em especial ao Programa de Pós-Graduação em Geociências, agradeço pela oportunidade para realização do curso de Doutorado.

Ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico – CNPq agradeço pelos recursos da bolsa de estudo e taxa de bancada que viabilizaram muitas etapas deste trabalho.

Ao Centro Regional de Ciências Nucleares, em especial ao DIAMB (Divisão de Análises Ambientais) agradeço por facultar suas instalações para o desenvolvimento da parte analítica deste trabalho.

À Dra. Adriana Baggio Garlíp agradeço pelo estímulo, solicitude e paciência em ouvir-me em muitas ocasiões.

Ao Dr. Ebenézer Moreno agradeço por viabilizar o empréstimo do cintilômetro e pelas enriquecedoras sugestões.

A Josivaldo Trindade de Souza, o “Pêta”, agradeço pela essencial ajuda nas etapas de campo.

Aos alunos do curso de Geologia da UFPE, Natália e Durutti, agradeço pela divertida e eficiente ajuda prestada na primeira etapa de campo.

Aos técnicos do DIAMB, Crescêncio, Gilberto, Roberto, Valdecy e Alex, e ao mestrando Emerson, agradeço pela ajuda na execução das análises geoquímicas e radiométricas.

Ao Dr. Cleyson Galamba e Dra. Marluce de Souza agradeço pelo apoio e amizade que, em uma fase ímpar de minha vida, me fizeram acreditar que poderia recomeçar e reescrever minha estória. E, hoje, ao término deste curso de Doutorado, isto se concretiza.

À Dra. Sônia Agostinho e Elizabeth, agradeço pela presteza e ajuda em muitas fases do curso de Doutorado.

Aos companheiros de jornada acadêmica, Maria José, Luciano, Josué, Antonio Vicente, Valberlândia, Lucimary, Ana Paula, David, Rivaldo, Ricardo, Natália Micheli, Maria, Clélia e Marinete, agradeço pelas alegrias e tristezas compartilhadas que suavizaram o trajeto percorrido.

Aos amigos Mozart, Gil, Ângela e Helder, agradeço pela força e estímulo em diversas etapas de minha vida, e pela alegria que sentem comigo por mais um desafio superado.

A Justino Barbosa agradeço pela ajuda e solidariedade prestada em muitas etapas deste trabalho.

À minha filha Ana Sofia, agradeço por ser a razão da minha existência, por compreender com maturidade minha ausência e por amar os estudos, o que a destaca como uma aluna exemplar e dedicada. Essa é, de fato, a minha maior e verdadeira vitória.

À minha família, representada pelos meus pais Antonio e Bdenice, meus irmãos Christinne, Gutemberg, Ibernnon e André, meus cunhados(as) Ivo, Joelma, Vanderlúcia e Juliana, e meus sobrinhos Danilo, Ana Luiza, Isabelly e Vitorya, agradeço pela “torcida organizada”, pela constante ajuda, e, pelo amor compartilhado que me fortalece e me faz continuar sempre em frente...

APRESENTAÇÃO

Este trabalho de Tese de Doutorado intitulado “Estudo da mobilidade e dispersão de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn e metais pesados no sistema solo-rocha do depósito de U-ETR de São José de Espinharas (PB)”, foi desenvolvido pela Engenheira Florestal MSc. Christianne Torres de Paiva, sob a orientação do Profº Dr. João Adauto de Souza Neto e co-orientação da Dra. Eliane Valentim Honorato.

A estrutura gráfica foi organizada em cinco capítulos abaixo discriminados, além de Referências Bibliográficas e Anexos.

- ✓ Capítulo I: Considerações Iniciais;
- ✓ Capítulo II: Aspectos Fisiográficos, Sócio-Econômicos e Geológicos da Área de Estudo;
- ✓ Capítulo III: Materiais e Métodos;
- ✓ Capítulo IV: Resultados e Discussões;
- ✓ Capítulo V: Considerações Finais;

RESUMO

O objetivo deste estudo foi avaliar mobilidade e dispersão dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e metais pesados (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb) no sistema solo-rocha na área da mineralização de U -ETR de São José de Espinharas (PB). No campo, em duas estações climáticas (seca e chuvosa), foram feitas coleta de amostras de solos e rochas, descrição morfológica dos perfis solo-rocha e medição da radiação gama total *in situ*. No laboratório, foram realizadas análises físico-químicas (teor de umidade, granulometria, densidade global, densidade das partículas, porosidade, pH, teor de matéria orgânica e de carbonatos totais), radiométricas (atividade e concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , e ^{222}Rn) e geoquímicas (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb). Os perfis solo-rocha são constituídos por Neossolos Litólicos sobre Sienogranito albitizado e Sienogranito, Neossolos Regolíticos sobre *Augen* Gnaiss e Granodiorito. São solos ácidos, arenosos, com maior conteúdo de matéria orgânica no horizonte superficial e de carbonatos totais nos horizontes subsuperficiais. A mobilidade sazonal dos radionuclídeos (^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K) e metais pesados (Fe, Mn, Pb) foi devida aos processos de eluviação, iluviação e lixiviação. O perfil de Neossolo Litólico sobre Sienogranito albitizado (CAE-02), destacou-se por possuir maiores valores da atividade gama *in situ*, maior concentração e atividade dos radionuclídeos ^{238}U e ^{232}Th , e valores máximos dos parâmetros relacionados aos níveis de radiação ambiental da área, que pode ser considerada como de elevado nível de radiação natural.

PALAVRAS-CHAVE: geoquímica ambiental, radioatividade natural, radionuclídeos, metais pesados

ABSTRACT

The objective of this study was to evaluate mobility and dispersion of the radionuclides ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra and ^{222}Rn and heavy metals (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni and Pb) in the system soil-rock in the area of the mineralization of U - ETR of São Jose de Espinharas (PB). In the field, in two climatic stations (dries and rainy), collection of soils samples and rocks had been made, morphologic description of the profiles soil-rock and measurement of the radiation total gamma *in situ*. In the laboratory, analyses had been carried through physicist-chemistries (humidity, granulometry, global density, density of particles, porosity, pH, organic matter and total carbonates), radiometric (activity and concentration of the radionuclides ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra and ^{222}Rn) and geochemistry (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni and Pb). The profiles soil-rock are constituted by Neossolos Litólicos on Sienogranito albitizado and Sienogranito, Neossolos Regolíticos on *Augen* Gnaiss and Granodiorito. They are acid, sandy texture, with bigger content of organic matter in the superficial horizon and of total carbonates in horizontes subsurface. The sazonal mobility of the radionuclides (^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K) and heavy metals (Fe, Mn, Pb) had to the processes of eluviação, iluviação and leaching. The profile of Neossolo Litólico on Sienogranito albitizado (CAE-02), was distinguished for possessing higher values of the activity gamma *in situ*, higher concentration and activity of the radionuclides ^{238}U and ^{232}Th , and maximum values of the parameters related to the levels of ambient radiation of the area, that can be considered as of higher level of natural radiation.

KEY- WORDS: environment geochemistry, natural radioactivity, radionuclides, heavy metals

SUMÁRIO

RESUMO	
ABSTRACT	
LISTA DE TABELAS.....	15
LISTA DE FIGURAS.....	17
CAPÍTULO I	
CONSIDERAÇÕES INICIAIS.....	20
1.1 INTRODUÇÃO	20
1.2 OBJETIVOS	21
1.2.1 Objetivo geral.....	21
1.2.2 Objetivos específicos	21
1.3 HIPÓTESE DE TRABALHO.....	21
1.4 REVISÃO DA LITERATURA	22
1.4.1 Radioatividade natural.....	23
1.4.2 Séries radioativas naturais	23
1.4.3 Anomalias radioativas naturais	26
1.4.3.1 Jazidas e depósitos de urânio no Brasil	27
1.4.4 Características geológicas e pedológicas de áreas com anomalias radioativas naturais.....	28
1.4.5 Efeitos da exposição humana às anomalias radioativas naturais.....	31
1.4.6 Mobilidade e dispersão dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn no ambiente superficial	33
1.4.7.1 Urânio (^{238}U).....	36
1.4.7.2 Tório (^{232}Th).....	39
1.4.7.3 Potássio (^{40}K)	41
1.4.7.4 Rádio (^{226}Ra)	44
1.4.7.5 Radônio (^{222}Rn)	45
1.4.7 Metais pesados	46
1.4.8 Mobilidade e dispersão dos metais pesados no ambiente superficial.....	47
1.4.8.1 Alumínio (Al)	48
1.4.8.2 Ferro (Fe).....	49
1.4.8.3 Manganês (Mn)	49
1.4.8.4 Cádmio (Cd).....	49
1.4.8.5 Cobalto (Co).....	50
1.4.8.6 Níquel (Ni).....	50

1.4.8.7 Cobre (Cu).....	50
1.4.8.8 Chumbo (Pb).....	51
CAPÍTULO II	
ASPECTOS FISIográficos, SÓCIO-ECONômicos E GEOLÓGICOS DA ÁREA DE ESTUDO.....	52
2.1 LOCALIZAÇÃO	52
2.2 RELEVO	53
2.3 SOLOS	54
2.4 CLIMA	55
2.5 VEGETAÇÃO	55
2.6 HIDROGRAFIA	56
2.7 ASPECTOS SÓCIO-ECONômicos	56
2.8 GEOLOGIA	57
CAPÍTULO III	
MATERIAIS E MÉTODOS.....	61
3.1 BASE CARTOGRÁFICA	61
3.2 SELEÇÃO DAS ESTAÇÕES DE AMOSTRAGEM (PERFIS SOLO-ROCHA)	63
3.3 TRABALHOS DE CAMPO	65
3.3.1 Abertura dos perfis solo-rocha	65
3.3.2 Coleta de amostras	65
3.4 TRABALHOS DE LABORATÓRIO	68
3.4.1 Preparação das amostras	68
3.4.2 Análises físicas e químicas.....	69
3.4.2.1 Descrição dos métodos utilizados para as análises físicas	69
3.4.2.1.1 Análise granulométrica (Método da pipeta).....	69
3.4.2.1.2 Densidade das partículas (Método do balão volumétrico).....	71
3.4.2.1.3 Densidade global (Método do anel volumétrico).....	72
3.4.2.1.4 Porosidade total	73
3.4.2.1.5 Teor de umidade	73
3.4.2.1.6 Difractometria de raios X	73
3.4.2.2 Descrição dos métodos utilizados para as análises químicas	74
3.4.2.2.1 pH em água.....	74
3.4.2.2 Matéria orgânica (Método da combustão por via seca)	74
3.4.2.3 Carbonatos totais (Método da combustão por via seca)	75
3.4.3 Análises geoquímicas	75
3.4.3.1 Digestão das amostras.....	75
3.4.4 Análises radiométricas	76
3.4.4.1 Determinação da atividade dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn em solos e rochas	76

3.4.4.2 Determinação da concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn em solos e rochas.....	79
3.5 INTERPRETAÇÃO DOS RESULTADOS	79
CAPÍTULO IV	
RESULTADOS E DISCUSSÕES.....	81
4.1 CARACTERIZAÇÃO MORFOLÓGICA DOS PERFIS SOLO-ROCHA	81
4.2 CARACTERIZAÇÃO FÍSICA DOS PERFIS SOLO-ROCHA	85
4.2.1 Granulometria e mineralogia	85
4.2.2 Densidade das partículas, densidade global e porosidade total dos solos	87
4.2.3 Teor de umidade dos solos e rochas	90
4.3 GEOQUÍMICA DOS PERFIS SOLO-ROCHA	91
4.3.1 Conteúdo de matéria orgânica nos solos.....	91
4.3.2 Concentração de carbonatos totais nos solos e rochas	92
4.3.3 pH dos solos	93
4.3.4 Concentração biodisponível de Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb nos perfis solo-rocha..	94
4.4.1.1 Qualidade dos dados analíticos dos metais pesados.....	104
4.5 CARACTERIZAÇÃO RADIOMÉTRICA DOS PERFIS SOLO-ROCHA.....	105
4.5.1 Radiação gama total <i>in situ</i>	105
4.5.2 Atividade específica dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn nas amostras de solo e rocha.....	113
4.5.3 Concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn nas amostras de solo e rocha.....	119
4.6 ANÁLISE DE CORRELAÇÃO	123
4.7 ESTUDO DA MOBILIDADE E DISPERSÃO DOS RADIONUCLÍDEOS E METAIS PESADOS NOS PERFIS SOLO-ROCHA	125
4.7.1 Mobilidade de radionuclídeos e de metais pesados para as condições de “Status” da formação dos solos	126
4.7.1.1 Perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05 - Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado.....	127
4.7.1.2 Perfil CAE-04 -Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito	128
4.7.1.3 Perfil CAE-06 -Neossolo Regolítico desenvolvido sobre <i>Augen</i> Gnaiss.....	129
4.7.1.4 Perfil CAE-07 - Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito	130
4.7.2 Mobilidade sazonal de radionuclídeos e metais pesados para as condições do solo já formado	136
4.7.2.1 Perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05 - Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado	137
4.7.2.2 Perfil CAE-04 - Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito	139
4.7.2.3 Perfil CAE-06 - Neossolo Regolítico desenvolvido sobre <i>Augen</i> Gnaiss.....	140
4.7.2.4 Perfil CAE-07 - Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito	141

4.8 CONSIDERAÇÕES SOBRE USO E OCUPAÇÃO DA ÁREA ESTUDADA	149
4.8.1 Níveis de radiação da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (PB)	149
4.8.1.1 Dose anual de radiação (DAR)	150
4.8.1.2 Dose gama externa e interna (Ra_{eq})	152
4.8.1.3 Taxa de exposição (TE)	152
4.8.1.4 Índice de concentração da atividade gama (I)	153
4.8.2 Considerações sobre os níveis de radiação da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (PB)	153
CAPÍTULO V	
CONSIDERAÇÕES FINAIS	155
5.1 CONCLUSÕES	155
5.2 CONTRIBUIÇÃO DO PRESENTE ESTUDO PARA PESQUISAS FUTURAS	157
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	159
ANEXOS.....	172

LISTA DE TABELAS

Tabela 1.1: Reservas (em toneladas de U_3O_8) dos principais depósitos conhecidos de urânio no Brasil (simplificado de Javaroni & Maciel (1985)).....	27
Tabela 1.2: Concentrações médias de U, Th e K em algumas rochas da crosta terrestre (Fonte: Vinogradov, 1959; Mason & Moore, 1982; Govett, 1983; Fischer, 1998).....	29
Tabela 1.3: Concentrações médias de urânio nos principais tipos de rochas ígneas, sedimentares e metamórficas (modificado de Rogers & Adams ,1969b).....	37
Tabela 1.4: Concentração média de Th e razão Th/U para alguns tipos de rochas ígneas, sedimentares e metamórficas (Fonte: Adaptado de Rogers & Adams, 1969a).....	41
Tabela 1.5: Porcentagem de potássio em alguns dos principais tipos de rochas ígneas e sedimentares (Heier & Billings, 1969)	43
Tabela 3.1. Dados geoquímicos de K, U e Th de amostras representativas da área do Depósito de São José de Espinharas (PB) e respectivos valores calculados da Dose Anual de Radiação (DAR) (Fonte: Souza Neto, 2004).....	63
Tabela 3.2: Tempo necessário, a diferentes temperaturas, para sedimentação de partículas de solo com peso específico de $2,65 \text{ g/cm}^3$. (*Para a argila ($d < 0,002\text{mm}$), considerou-se uma profundidade de 5cm e para argila ⁽¹⁾ + silte ($d < 0,02\text{mm}$), a profundidade de 10cm.....	70
Tabela 4.1: Composição granulométrica das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	86
Tabela 4.2: Composição mineralógica dos perfis solo-rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	88
Tabela 4.3: Densidade das partículas e densidade global das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	89
Tabela 4.4: Valores orientadores para metais pesados em solos de vários países (¹ CETESB, 2005; ² VROM, 1994; ³ US-EPA, 1996).....	104
Tabela 4.5: Valores da Radiação Gama Total <i>in situ</i> das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	113
Tabela 4.6: Limites de detecção (LD) das atividades do ²³⁸ U, ²³² Th, ⁴⁰ K e ²²⁶ Ra.....	115
Tabela 4.7: Atividades específicas do ²³⁸ U, ²³² Th, ⁴⁰ K, ²²⁶ Ra e ²²² Rn e as razões ²²⁶ Ra/ ²³⁸ U e ²³² Th/ ²³⁸ U das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	117
Tabela 4.8: Valores da atividade de ²³⁸ U em solos da área de São José de Espinharas (PB) e de diversas outras localidades no Globo.....	118

Tabela 4.9: Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	122
Tabela 4.10: Matriz de correlação mostrando os coeficientes de correlação (R^2) entre todos os parâmetros estudados, e considerando-se todos os perfis solo-rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	124
Tabela 4.11: Distribuição dos horizontes superficiais e subsuperficiais em todos os perfis solo-rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	126
Tabela 4.12: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação da rocha original para o horizonte do solo imediatamente superior na condição “status” da formação do solo.....	132
Tabela 4.13: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação da rocha original para o horizonte mais superficial na condição “status” da formação do solo.....	133
Tabela 4.14: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação do horizonte superficial na condição “status” da formação do solo para o horizonte superficial na condição “sazonal” do solo já formado.....	143
Tabela 4.15: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação de um horizonte para o outro imediatamente sobrejacente.....	144
Tabela 4.16: Valores da Dose Anual de Radiação (DAR), Dose gama externa e interna ($R_{a_{eq}}$), Taxa de exposição (TE) e Índice de Concentração de Atividade Gama (I) calculados para as amostras de solo e rocha estudadas na área do Depósito de U-ETR da São José de Espinharas (PB).....	150

LISTA DE FIGURAS

Figura 1.1: Séries naturais de decaimento radioativo do ^{238}U , ^{232}Th e ^{235}U (Fonte: Adaptado de Ku, 1976).....	25
Figura 1.2: Localização dos principais depósitos conhecidos de urânio no Brasil (Fonte: adaptado de Forman (1978) e Javaroni & Maciel (1985)).....	27
Figura 1.3: Distribuição de urânio em rochas ígneas (Fonte: Rogers & Adams, 1969b).....	29
Figura 1.4: Esquema de decaimento do ^{40}K , por intermédio dos seguintes modos: (1) captura eletrônica com emissão de raios γ , (2) captura eletrônica sem emissão de raios γ , (3) emissão de pósitron, e (4) emissão beta. Também estão indicadas as energias, E, para cada estado de decaimento e a porcentagem de ^{40}K que decai para cada estado (Fonte: Dalrymple & Lanphere, 1969).....	43
Figura 1.5: Processos dinâmicos interativos que governam a solubilidade, disponibilidade e mobilidade de metais pesados no solo (Fonte: McBride (1994)).....	48
Figura 2.1: Mapa de localização do município de São José de Espinharas (PB) (Fonte: CPRM, 2005).....	53
Figura 2.2: Aspectos dos <i>inselbergs</i> que se destacam na paisagem do município de São José de Espinharas (PB).....	54
Figura 2.3: Aspecto da vegetação da caatinga no município de São José de Espinharas (PB) ...	56
Figura 2.4: Mapa geológico da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (escala 1:40.000) com valores de DAR calculados (Simplificado de Souza (2004)).....	60
Figura 3.1: Mapas aeroradiométrico e aeromagnetométrico da área estudada e adjacências (Escala 1:250.000) (Modificado de DNPM/CNEN/CPRM, 1973).....	62
Figura 3.2: Mapa geológico da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (escala 1:40.000) com as estações de amostragem (CAE)(perfis solo-rocha). (Simplificado de Souza (2004))	64
Figura 3.3: Taxas de precipitação pluviométrica mensal acumulada em São José de Espinharas (PB) no período 2000 a 2007 (Fonte: CPTEC/INPE, 2007).....	66
Figura 3.4: Taxa de precipitação pluviométrica diária em São José de Espinharas (PB) no mês de fevereiro de 2007 (Fonte: CPTEC/INPE, 2007).....	67
Figura 3.5: Taxa de precipitação pluviométrica diária em São José de Espinharas (PB) no mês de julho de 2007 (Fonte: CPTEC/INPE, 2007).....	67
Figura 3.6: Triângulo para classificação textural do solo (Fonte: EMBRAPA, 1999).....	71
Figura 4.1: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-01 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	82
Figura 4.2: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-02 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	82

Figura 4.3: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-03 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB)	83
Figura 4.4: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-04 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	83
Figura 4.5: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-05 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	84
Figura 4.6: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-06 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	84
Figura 4.7: Descrição morfológica do perfil solo-rocha CAE-07 da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	85
Figura 4.8: Porosidade total (%) das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	90
Figura 4.9: Teor de umidade das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	91
Figura 4.10: Concentração de matéria orgânica das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	92
Figura 4.11: Concentração de carbonatos totais das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	93
Figura 4.12: Valores de pH das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).....	94
Figuras 4.13: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-01.....	97
Figuras 4.14: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-02.....	98
Figuras 4.15: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-03.....	99
Figuras 4.16: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-04.....	100
Figuras 4.17: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-05.....	101
Figuras 4.18: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-06.....	102
Figuras 4.19: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil solo-rocha CAE-07.....	103
Figuras 4.20: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-01.....	106
Figuras 4.21: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-02.....	107
Figuras 4.22: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-03.....	108

Figuras 4.23: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-04.....	109
Figuras 4.24: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-05.....	110
Figuras 4.25: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-06.....	111
Figuras 4.26: Radiação Gama Total <i>in situ</i> (a), Atividade Específica (b) e Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn (c) no perfil solo-rocha CAE-07.....	112
Figura 4.27: Curva de eficiência do equipamento HPGe.....	114
Figura 4.28: Espectro de calibração.....	114
Figura 4.99: Mapa geológico da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (escala 1:40.000) com valores de DAR calculados para cada perfil solo-rocha estudado (Simplificado de Souza (2004)).....	151

CAPÍTULO I

CONSIDERAÇÕES INICIAIS

1.1 INTRODUÇÃO

O descobrimento da radioatividade há pouco mais de um século, foi a origem de um desenvolvimento científico extraordinário, principalmente nos campos da Física e Química. Ao longo deste tempo, inúmeras possibilidades de uso de elementos radioativos têm sido reconhecidas - desde a geração de energia e aplicações no diagnóstico e tratamento de doenças até estudos de datação de materiais geológicos e prospecção mineral. No entanto, as pesquisas têm chamado a atenção para os possíveis riscos à saúde humana provocados pela exposição à radiação (Bowie & Plant, 1983; IRD-CNEN, 2000).

Excetuando-se o caso de depósitos minerais que contêm teores dos elementos radioativos U e Th acima de 1%, os materiais geológicos como rochas e solos, por exemplo, possuem teores destes elementos radioativos da ordem de ppm (Aieta *et al.*, 1987). Dessa forma, os depósitos minerais são bons exemplos para se avaliar mobilidade e dispersão destes elementos no ambiente secundário, além de estudos de impacto de radiação na saúde do ser humano e no ambiente.

Neste contexto, o presente trabalho se propõe a compreender os processos que controlam a mobilidade e dispersão de elementos radioativos no sistema rocha-solo, em condição climática específica (semi-árido) e em área de comprovada radioatividade natural anômala, além de gerar subsídios técnicos para implementação de política de uso e ocupação de áreas com restrições ambientais.

1. 2 OBJETIVOS

1.2.1 Objetivo Geral

Descrever as características geoquímicas e mineralógicas dos perfis de alteração solo-rocha em condições semi-áridas, selecionados na área da mineralização de U e Elementos Terras Raras (ETR) de São José de Espinharas (PB) e avaliar a mobilidade e a dispersão dos elementos químicos radioativos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e metais pesados (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb) nestes perfis.

1.2.2 Objetivos Específicos

- Utilizar os dados aerogeofísicos (magnéticos e radiométricos) oriundos do Projeto Aerogeofísica do Seridó (DNPM/CNEN/CPRM, 1973), dados geológicos gerados a partir do mapeamento geológico de detalhe (escala 1:40.000) (Souza, 2004) e dados bibliográficos para caracterização geológica e radiométrica da área em estudo;
- Calcular os valores máximos da Dose Anual de Radiação na área estudada a partir dos dados geoquímicos disponíveis de concentração de ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K ;
- Caracterizar a área de estudo, através de levantamento bibliográfico, quanto aos parâmetros: demográficos (número de habitantes por faixa etária e escolaridade), econômicos (renda per capita e atividade econômica principal) e meio físico (solo, clima e vegetação);
- Realizar análises geoquímicas e radiométricas nas amostras de rocha e solo, coletadas nas estações seca e chuvosa, em perfis representativos de cada tipo litológico que ocorre na área, para determinação das concentrações de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e as concentrações dos metais Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb, além do pH, teor de fração argila, concentração de matéria orgânica nas amostras de solo e carbonatos totais nas amostras de solo e rochas;
- Avaliar a mobilidade e a dispersão de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e dos metais Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb no sistema rocha-solo, considerando o aspecto da sazonalidade;

- Determinar, a partir dos teores de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn obtidos no sistema rocha-solo, os valores máximos da Dose Anual de Radiação na área com base nas atividades específicas e concentração destes radionuclídeos;
- Avaliar, a partir da Dose Anual de Radiação e os limites de tolerabilidade do ser humano à radiação, o risco de exposição humana à referida dose;
- Obter mapas temáticos (e.g. Dose Anual de Radiação em rocha e solo) para a área estudada;
- Sugerir alternativas para uso e ocupação adequados da área estudada

1.3 HIPÓTESE DE TRABALHO

Na Litosfera, a ocorrência da maioria dos processos, naturais ou antrópicos, se expressa pela presença de associações de elementos químicos e características do processo gerador, podendo resultar em concentrações anômalas de determinados elementos químicos em algumas áreas. Estas áreas são, portanto, ideais para estudos que avaliem a mobilidade e dispersão destes elementos no ambiente secundário. Estes estudos por sua vez, serão importantes contribuintes para avaliação do risco associado à saúde humana e para definição de políticas públicas direcionadas ao uso e ocupação de locais com características semelhantes.

1.4 REVISÃO DA LITERATURA

1.4.1 Radioatividade Natural

Radiação é a energia que se propaga através da matéria ou do espaço em forma de partículas ou ondas eletromagnéticas. Radioatividade é o fenômeno pelo qual um núcleo instável emite espontaneamente partículas e/ou ondas em uma reação nuclear denominada decomposição, transmutação, desintegração ou decaimento radioativo, transformando-se em outro núcleo mais estável até atingir a configuração nuclear de equilíbrio. Os átomos com núcleos instáveis que emitem radiações são denominados radionuclídeos (Attendorff & Bowie, 1997; Cardoso *et al.*, 2002).

A radiação natural ou ambiental corresponde a 70% da radiação recebida pelo homem sendo a principal fonte de radiação que, durante toda a história de vida na Terra, os organismos têm sido expostos. As fontes naturais de radioatividade podem ser provenientes dos radionuclídeos cosmogênicos e/ou dos radionuclídeos que se concentram na crosta terrestre (Bowie & Plant, 1983; Tauhata *et al.*, 2003; Bonotto, 2004).

Além dos radionuclídeos cosmogênicos, contribuem como fonte natural de radioatividade elementos que estão presentes na Terra desde a sua formação há cerca de 4,5 Ga, inserindo-se nesse contexto apenas aqueles que possuem isótopos radioativos cuja meia-vida é suficientemente longa para permitir que a atividade permaneça existindo mesmo até o tempo atual. Os mais importantes desses elementos são o urânio, tório e potássio, que são litófilos (preferência por ligação química com elementos da litosfera) e se concentram preferencialmente nas rochas ígneas ácidas (Carvalho, 1995; Bonotto, 2004).

1.4.2 Séries radioativas naturais

Os núcleos instáveis de uma mesma espécie (mesmo elemento químico) e de massas diferentes, denominados radioisótopos, não realizam todas as mudanças ao mesmo tempo. As emissões de radiação são feitas de modo imprevisível e não se pode saber o momento em que um determinado núcleo irá emitir radiação. Entretanto, para a grande quantidade de átomos existentes em uma amostra é razoável esperar-se um certo número de emissões ou transformações em cada segundo. Essa “taxa” de transformações é denominada de atividade da amostra, que pode ser medida em Bq (Becquerel) que equivale a uma desintegração por segundo ou em Ci (Curie) que equivale a $3,7 \times 10^{10}$ Bq. Desta

forma, a taxa de decaimento radioativo natural varia de elemento para elemento e o tempo que leva para que metade dos átomos de qualquer elemento radioativo se desintegre é conhecido como sua *meia-vida*. O processo de decaimento prossegue e não se encerra após uma meia vida, uma vez que para cada meia-vida que passa, a atividade vai sendo reduzida à metade da anterior, até atingir um valor insignificante que não permite mais distinguir suas radiações das do meio ambiente. Dependendo do valor inicial, em muitas fontes radioativas utilizadas em laboratórios de análise e pesquisa, após 10 (dez) meias vidas, atinge-se esse nível (Bowie & Plant, 1983; Attendorn & Bowie, 1997; Bonotto, 2004).

É importante ressaltar que o fenômeno da radioatividade é exclusivamente nuclear, ou seja, ele se deve unicamente ao núcleo do átomo e não é afetado por nenhum fator externo, tais como pressão e temperatura (Cardoso *et al.*, 2002).

No estudo da radioatividade, constatou-se que existem apenas três séries ou famílias radioativas naturais, conhecidas como: Série do Urânio, Série do Actínio e Série do Tório (Figura 1.1). Sendo que, a Série do Actínio se inicia com o ^{235}U e tem essa denominação porque se pensava que era iniciada pelo ^{227}Ac . As três séries naturais terminam em isótopos estáveis do chumbo, respectivamente, ^{206}Pb , ^{207}Pb e ^{208}Pb (Attendorn & Bowen, 1997).

As séries radioativas do ^{238}U , do ^{235}U e ^{232}Th apresentam algumas características comuns: cada série é iniciada por um radioisótopo de meia vida longa (^{238}U , ^{235}U e ^{232}Th); cada uma das séries contém um isótopo do gás nobre radônio (^{222}Rn na série do ^{238}U , ^{219}Rn na série do ^{235}U e ^{220}Rn na série do ^{232}Th); todas as três séries possuem um isótopo estável do chumbo (Pb) como produto final (^{206}Pb na série do ^{238}U , ^{207}Pb na série do ^{235}U e ^{208}Pb na série do ^{232}Th) (Ku, 1976; Bowie & Plant, 1983; Attendorn & Bowen, 1997).

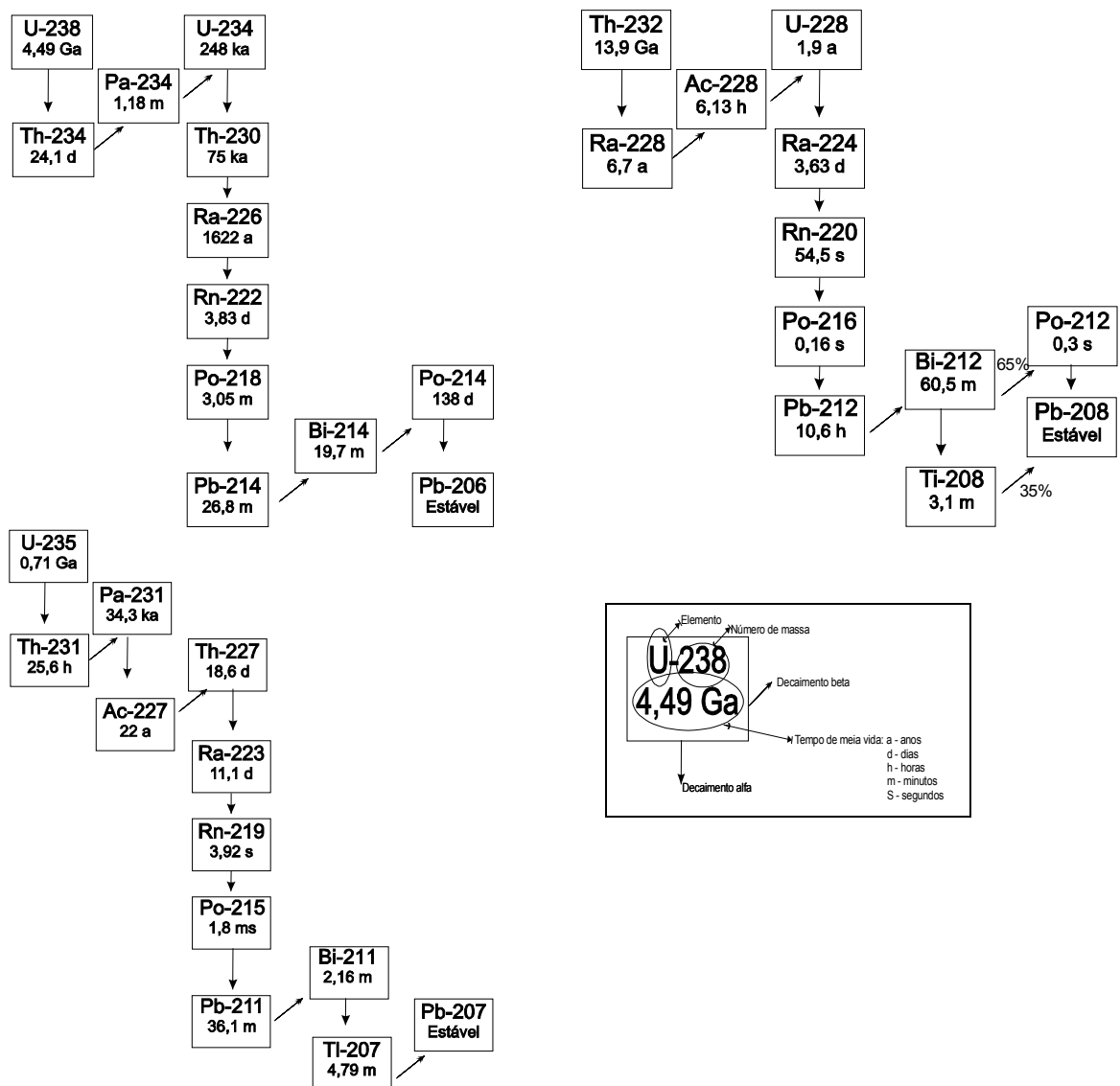


Figura 1.1: Séries naturais de decaimento radioativo do ^{238}U , ^{232}Th e ^{235}U
(Fonte: Adaptado de Ku, 1976).

1.4.3 Anomalias radioativas naturais

A abundância natural de um elemento em um material sem influência antrópica ou antropogênica é denominada *background*. No entanto, o *background* varia em função dos materiais e dos tipos de influências ambientais (como por exemplo as condições do meio) correspondendo ao estado disperso de um elemento em um material amostrado sem a atuação de quaisquer agentes contaminantes. Anomalias são, teoricamente, valores acrescidos ao *background* devido ao aumento da concentração em um ou mais elementos, relacionados com a existência de contaminação ambiental e são consideradas significativas se apresentam consequências do ponto de vista ambiental (Bowie & Plant, 1983; Rohde, 2004).

A radioatividade é um processo natural (IRD-CNEN, 2000; Tauhata *et al.*, 2003) e a ocorrência de elementos radioativos naturais é bastante ampla, podendo ser encontrados em rochas, solos e sedimentos em concentrações variadas (Pereira & Neves, 2003). Tais concentrações podem determinar áreas com anomalias radioativas naturais uma vez que estes elementos podem se dispersar ou concentrar-se no ambiente dependendo das suas características químicas e sua mobilidade, além de características locais relacionadas à litologia, relevo, condições físico-químicas do solo e clima (Aieta *et al.*, 1987; Rebelo *et al.*, 2003; Rohde, 2004).

No Brasil, ocorrem várias áreas com anomalia radioativa natural. O planalto de Poços de Caldas - MG, por exemplo, é uma das maiores intrusões alcalinas do mundo e uma região de elevada radioatividade natural (Amaral, 1992) e na região Nordeste, especialmente na costa dos Estados de Pernambuco e Paraíba, onde localiza-se a região urano-fosfática de origem sedimentar verificam-se anomalias radioativas naturais (Lima, 1996).

Além das áreas citadas, os depósitos de urânio, apresentam, naturalmente, elevada radioatividade natural devido aos teores relativamente elevados deste elemento. Tais depósitos são caracterizados por teores de U_3O_8 que excedem em cerca de 50 vezes a concentração média das rochas crustais que corresponde a 100 ppm (Crawley, 1983).

1.4.3.1 Jazidas e depósitos de urânio no Brasil

No território brasileiro são conhecidos oito principais jazidas/depósitos de urânio perfazendo um total de 301.490 t de U_3O_8 , sendo eles: Itataia (CE), São José de Espinharas (PB), Lagoa Real (BA), Campos Belos/Rio Preto e Amorinópolis (GO), Quadrilátero Ferrífero (MG), Poços de Caldas (MG), Figueira (PR) (Javaroni & Maciel, 1985), e Pitinga (AM) (Majdalani, 1999) (Figura 1.2). Na Tabela 1.1 podem ser visualizadas as reservas de U_3O_8 dos principais jazidas/depósitos de urânio no Brasil.

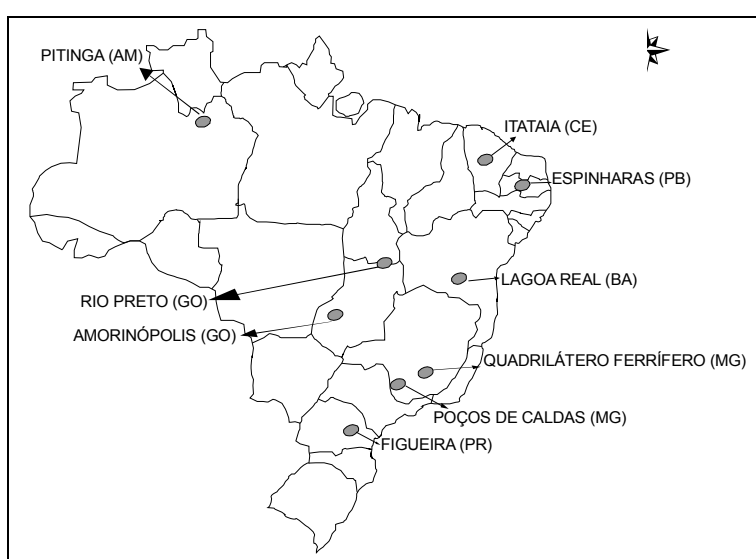


Figura 1.2: Localização dos principais jazidas/depósitos conhecidos de urânio no Brasil (Fonte: adaptado de Forman (1978) e Javaroni & Maciel (1985)).

Tabela 1.1: Reservas (em toneladas de U_3O_8) dos principais jazidas/depósitos conhecidos de urânio no Brasil (simplificado de Javaroni & Maciel (1985)).

JAZIDAS/DEPÓSITOS	CLASSES DE RESERVA		TOTAL
	MEDIDAS INDICADAS	INFERIDAS	
Província uranífera de Itataia (CE)	91.200	51.300	142.500
São José Espinharas (PB)	5.000	5.000	10.000
Província uranífera de Lagoa Real (BA)	61.840	31.350	93.190
Província uranífera de Rio Preto (GO)	500	500	1.000
Amorinópolis (GO)	2.000	3.000	5.000
Quadrilátero Ferrífero (MG)	5.000	10.000	15.000
Planalto de Poços de Caldas (MG)	20.000	6.800	26.800
Figueira (PR)	7.000	1.000	8.000
TOTAL	192.540	108.950	301.490

O depósito de urânio de São José de Espinharas (PB), foco da presente pesquisa, possui reserva total de 10.000 toneladas de U_3O_8 (Javaroni & Maciel, 1985) e está localizado a 25 km a norte da cidade de Patos. Este depósito foi descoberto através de um levantamento radiométrico autoportado, com posterior verificação de campo e avaliação geológica de anomalias e sondagens geológicas, realizados entre o período de 1977 a 1982. É um depósito de urânio epigenético, de origem metassomática, onde ocorrem gnaisses e xistos pré-cambrianos com granitos intrusivos neoproterozóicos, que foram alterados por processos metassomáticos, tais como albitização e hematização, que promoveram lixiviação da sílica e enriquecimento em fosfato, urânio e Elementos Terras Raras (ETR) (Santos & Anacleto, 1985).

1.4.4 Características geológicas e pedológicas de áreas com anomalias radioativas naturais

De uma maneira geral, os radionuclídeos gerados pelo decaimento radioativo dos elementos U e Th, podem ser encontrados em rochas, solos, sedimentos, água e ar em concentrações variadas (Pereira & Neves, 2003). Contudo, tais concentrações no ambiente dependem de uma série de fatores como: fonte do radionuclídeo pai, tempo de meia-vida do isótopo gerado e condições físico-químicas do ambiente geoquímico (pH, potencial de oxidação-redução, etc.). Estes fatores, por sua vez, afetam a solubilidade e adsorção do radionuclídeo no sedimento ou solo e a dissolução da rocha-fonte (Aieta *et al.*, 1987).

Mais de 90% das reservas de urânio ocorrem em conglomerados pré-cambrianos ou em rochas fanerozóicas diretamente sobrejacentes, sendo sua redistribuição provavelmente resultante de processos orogênicos e da anatexia associada (Bowie *et al.*, 1983)

Por exemplo, em Portugal, as maiores concentrações de radionuclídeos foram observadas em áreas cujo substrato geológico é principalmente constituído por granitos (Neves *et al.*, 1996; Pereira *et al.*, 1999).

No Brasil, realizando-se um mapeamento da radioatividade ambiental do Rio de Janeiro, observou-se que o parâmetro geoambiental melhor correlacionado com a distribuição dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K é o geológico, comparado aos parâmetros geomorfológicos e pedológicos (Licínio, 2002).

Algumas rochas como folhelhos (ricos em matéria orgânica), rochas sedimentares fosfáticas e granitóides possuem concentrações relativamente elevadas dos elementos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K (Tabela 1.2). Em rochas granitóides, os radionuclídeos U e Th estão distribuídos em diferentes fases minerais e estão contidos, principalmente, em minerais acessórios como

zircão, monazita e titanita (Rebello *et al.*, 2003). Os minerais acessórios podem conter mais de 85% de todo o urânio de algumas rochas (Guthrie & Kleeman, 1986).

Nas rochas ígneas (Figura 1.3), o urânio ocorre principalmente em minerais acessórios, embora sua presença seja verificada também nos contornos dos grãos e defeitos nos retículos cristalinos das fases minerais principais (Bonotto, 2004).

Tabela 1.2: Concentrações médias de U, Th e K em algumas rochas da crosta terrestre (Fonte: Vinogradov, 1959; Heier & Billings, 1969; Mason & Moore, 1982; Govett, 1983; Fischer, 1998).

ROCHAS	CONCENTRAÇÕES (ppm)		
	U	Th	K
Folhelhos Orgânicos	3 a 250	1,4 a 28	26.600
Fosfáticas	245	3,9	-
Granitóides	0,003 a 8	0,01 a 56	15.000 – 45.300
Argilitos / Sedimentos argilosos	1,0	5 a 12	28.100
Basalto	0,9	4,2	12.600

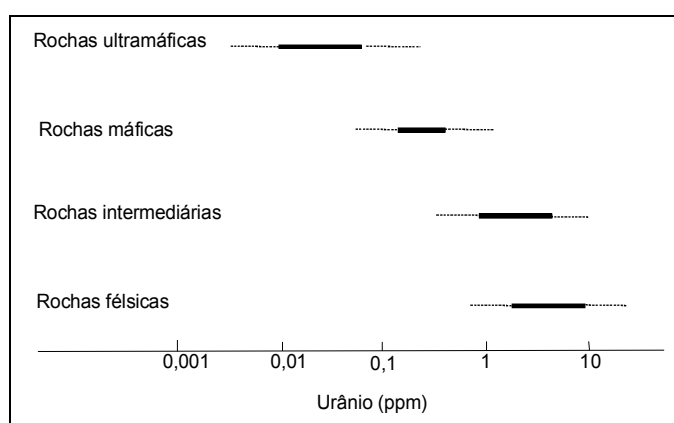


Figura 1.3: Distribuição de urânio em rochas ígneas (Fonte: Rogers & Adams, 1969b).

No tocante aos solos, pode-se dizer que os solos autóctones usualmente refletem o conteúdo de urânio da rocha de origem, contudo, também podem ser empobrecidos ou enriquecidos em U, dependendo das condições de óxido-redução e pH das águas circulantes. Os teores típicos de U nos solos variam de 1 a 5 mg/kg. Em algumas circunstâncias, nas quais a matéria orgânica húmica se acumula e a migração de água através do meio se mantém, o U pode ser enriquecido por um fator de 10.000 vezes a partir da água contendo valores não elevados desse elemento (Bowie & Plant, 1983).

Durante o processo de evolução dos solos, os minerais mais resistentes que contêm urânio e tório, tendem a se concentrar, principalmente em solos eluviais. O urânio solúvel é mobilizado para a solução do solo, mas seu comportamento depende das condições de pH, Eh, presença ou ausência de argilominerais e fluxo do lençol freático. Além disso, características físicas do solo, tais como textura, porosidade e densidade, determinam a

concentração ou a abundância de elementos radioativos e os níveis de radiação ambiental local (Alencar, 2003). Solos argilosos, por exemplo, são mais radioativos que os arenosos, devido, provavelmente, à adsorção dos radionuclídeos pelos argilominerais (Rebello *et al.*, 2003).

Analisando a resistividade elétrica e a radiação gama natural no estudo de solos sob cerrado nativo, Nascimento (2003) verificou que a radioatividade elevada dos solos argilosos deve estar associada à adsorção dos isótopos radioativos pelos argilominerais e, nos casos em que a radiação devida ao potássio é elevada, podem existir fontes adicionais deste elemento, ou seja, a presença de minerais potássicos.

Nos solos de textura arenosa, semelhante aos da área estudada, as concentrações de urânio são, geralmente, menores que 1 ppm, graças à facilidade com que é lixiviado dos interstícios ou da pitchblenda e cofinita em ambiente oxidante. Porém, quando tais solos são derivados de rochas ígneas contendo minerais resistatos enriquecidos em U e Th, podem ser observadas concentrações anormais desses elementos (Bonotto, 2004).

Além da litologia e condições físico-químicas locais, o clima (variações sazonais), processos físicos, tais como erosão, e processos químicos, tais como precipitação química, exercem um singular papel na concentração ou dispersão de radionuclídeos no ambiente circunvizinho (e.g. solo, sedimento, água) (Rebello *et al.*, 2003; Lottermoser *et al.*, 2005).

Em estudo conduzido na Província Uranífera Lagoa Real (BA), foi verificado que mesmo fora da área de mineralização, os teores naturais do urânio nas águas e nos solos Podzólicos principalmente no horizonte A, eram elevados (Oliveira, 2006).

Investigando-se a dispersão de contaminantes ambientais na mina reabilitada de urânio de Mary Kathleen, situada em Queensland, semi-árido da Austrália, verificou-se que a dispersão de urânio e seus radionuclídeos em solos e sedimentos, ocorreu por meio de processos físicos (erosão) e processos químicos (precipitação química). Embora os procedimentos de reabilitação da mina tenham sido bem sucedidos na redução destes radionuclídeos no ambiente circunvizinho, a mobilidade física e química destes elementos ainda é significativa, inclusive com transferência para plantas, mesmo após 20 anos da reabilitação (Lottermoser *et al.*, 2005).

É importante ressaltar-se que a presença de ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , entre outros radionuclídeos, também pode ser verificada em fertilizantes fosfatados produzidos a partir de rochas fosfáticas. Estes fertilizantes são usados na agricultura, particularmente nas regiões tropicais onde a remoção de nutrientes do solo é mais intensa. Desta forma, a atividade agrícola pode conduzir a uma redistribuição de radionuclídeos no meio ambiente por processos antrópicos e com isso aumentar a radiação gama natural emitida pelos solos (Menzel, 1968; Pfister *et al.*, 1976; Ring, 1977; Guimond, 1978; Montvedt, 1986; Silva, 1997; Souza, 1998).

Em estudo conduzido na região de Araras (SP), foi verificado que o urânio e o tório concentraram-se em solos oriundos do intemperismo de rochas básicas, mais desenvolvidos com predominância de argilominerais e óxidos de ferro e com altos teores de potássio – os Latossolos Roxos – massivamente fertilizados com fosfatos e que ocorriam em áreas planas e elevadas do terreno estudado. Verificou-se que as anomalias de urânio estavam associadas à granulometria (fração argila) em regolitos desenvolvidos sobre soleiras diabásicas, enquanto que anomalias de potássio e tório, observadas em aluviões quaternários às margens do Rio Moji, poderiam ser atribuídas, no caso do potássio, à presença de feldspatos e micas no solo e no caso do tório, à fertilização local e ao transporte de argilominerais e óxidos de ferro provenientes das porções mais elevadas do terreno (Souza, 1998).

1.4.5 Efeitos da exposição humana às anomalias radioativas naturais

Nas últimas décadas, tem havido um crescente interesse na determinação dos níveis de radiação gama ambiental, aos quais a população de uma determinada região está exposta. A determinação da dose devido à exposição à radioatividade ambiental é um dos objetivos básicos de qualquer programa de monitoramento ambiental. Dessa forma, o conhecimento sobre fontes naturais e antropogênicas das substâncias, neste caso específico as radioativas, perigosas ao ambiente é muito importante, principalmente no que diz respeito à exposição e biodisponibilidade destas substâncias, uma vez que tais características permitem definir os efeitos e riscos em relação à saúde humana (Selinus, 2006).

O urânio é perigoso à saúde humana e, conseqüentemente, a existência de fontes radioativas que podem contaminar aquíferos, córregos e terras agricultáveis requerem investigações hidrológicas, radiométricas, mineralógicas, geoquímicas e biogeoquímicas detalhadas (Lottermoser *et al.*, 2005). O Rn, gás radioativo que ocorre nas rochas, nos solos, no ar e na água, gerado pelo decaimento radioativo do ^{238}U , é incolor e inodoro, não é percebido no ambiente, tornando-se um sério risco ao ser humano, principalmente dentro de habitações, onde tende a concentrar-se. O radônio e seus descendentes radiogênicos introduzem-se nos pulmões através das vias respiratórias, onde são fixados os isótopos do Po, Pb e Bi, gerados por decaimentos sucessivos até a geração da forma final estável que é o ^{206}Pb . Embora os isótopos citados possuam períodos de meia vida que não excedem alguns minutos, produz-se uma irradiação contínua dos tecidos pulmonares, em reduzido intervalo de tempo, em decorrência da emissão de radiação ionizante promovida pelos decaimentos radioativos (Pereira & Neves, 2003). A Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos (US EPA) estima que de 1 a 3 pessoas em cada 100 durante sua vida

inalem ar com concentrações de radônio superiores a 150 Bq.L⁻¹ e incorrem no risco de contrair cancro pulmonar. Este risco é incrementado significativamente no caso de fumantes, devido ao efeito sinérgico existente (Pereira & Neves, 2003).

Além da radioatividade, alguns descendentes radiogênicos do urânio e tório, particularmente o ²²⁶Ra e ²¹⁰Pb, apresentam toxicidade química (Santos *et al.*, 2002; Costa, 2003). Este fato pode ser agravado quando ocorre dispersão destes radionuclídeos no ambiente, através de atividades antropogênicas (mineração, agricultura, entre outras), que podem promover a concentração ou disponibilização no ambiente e, conseqüentemente, um aumento da radiação natural (Rio, 1999). Isto potencialmente expõe a população a radiações ionizantes e seus efeitos deletérios à saúde, tais como doenças, morte ou mutação genética (Costa, 2003; Bonotto, 2004), além de causar danos irreparáveis aos ecossistemas (Campos, 1999).

O efeito biológico da radiação não se deve à quantidade de energia absorvida pelo organismo, mas ao tamanho do fóton ou a quantidade de energia armazenada na radiação. Tais efeitos podem ser classificados em estocásticos – que são aqueles cuja probabilidade de ocorrer aumenta com a dose, sem a existência de um limiar da dose, como por exemplo: efeitos hereditários e aparecimento de câncer – e os efeitos não estocásticos que são aqueles cuja severidade depende da dose e que apresentam um limiar de dose, como por exemplo: mortalidade animal e distúrbios imunológicos (IPEN, 2006).

As exposições devido às fontes naturais de radiação, com poucas exceções, geralmente não têm o mesmo grau de controle que as exposições devido às fontes produzidas pelo homem. As poucas exceções são as exposições em minas e usinas de urânio e as práticas onde são manuseadas formas purificadas de materiais radioativos de ocorrência natural, tais como o ²²⁶Ra e o Th. Mesmo onde o controle ocupacional já foi introduzido, os dados de dose individuais são bastante raros, sendo que a maioria dos dados deve estar disponível nos próximos anos, como resultado de avaliações realizadas nos países com respeito a se deverão ou não introduzir medidas de controle (UNSCEAR, 2000).

A Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA), órgão da ONU cujo principal objetivo é estabelecer padrões de segurança para a proteção da saúde, da vida e das propriedades no desenvolvimento e aplicação da energia nuclear para fins pacíficos e recomendá-los aos países membros, ainda não trata especificamente do problema dos materiais radioativos de ocorrência natural em suas normas de proteção radiológica, como já acontece na Comunidade Européia (Smith & Kemball, 1998). Embora, atualmente, esteja em fase de elaboração, por esta agência, o *Safety Guide*, publicado em agosto de 2003 como *Draft Safety Guide DS62*, tem como objetivo propor estratégias com relação à monitoramento de radionuclídeos em efluentes e no meio ambiente (Lauria *et al*, 2003).

As normas brasileiras, todas emitidas pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN) que tratam das Diretrizes Básicas de Radioproteção e regulamentam a utilização da radiação ionizante no País são, respectivamente, CNEN-NE 3.01 (CNEN, 1988) e CNEN-NE 6.02. (CNEN, 1998). De acordo com esta última norma, os radionuclídeos são classificados quanto à sua radiotoxicidade em classes que variam de A até D, sendo a classe A de muito alta radiotoxicidade e a D de baixa radiotoxicidade. Os radionuclídeos de interesse da série do U e Th estão classificados como de muito alta radiotoxicidade, classe A, alta radiotoxicidade, classe B, e relativa radiotoxicidade, classe C.

As doses limites de radiação são: 50 mSv/ano ou média de 20 mSv/5anos para trabalhadores, e 1 mSv/ano para o público (IAEA-ICRP, 1990).

A caracterização da exposição da população à radiação natural é de extrema importância para o estabelecimento de valores de referência como subsídio aos sistemas de normalização (Santos *et al.*, 2002), e para servir como fonte básica de informação a população.

1.4.6 Mobilidade e dispersão dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn no ambiente superficial

A mobilidade de um elemento pode ser definida como a facilidade com que ele se move em um determinado ambiente. A dispersão de um elemento em meio aquoso especificamente, ou em qualquer meio sólido, mas sob transporte aquoso pode ocorrer na forma de íons livres ou íons complexos em solução, adsorvidos ou co-precipitados em sólidos finos (óxidos hidratados, argilominerais, matéria orgânica) ou em colóides (Goldschmidt, 1954; Mason & Moore, 1982; Govett, 1983; Carvalho, 1995; Krauskopf & Bird, 1995). Contudo, é importante ressaltar que as relações de equilíbrio entre minerais e solução são aceitáveis no ambiente natural de superfície, apenas para os elementos maiores, já que o comportamento dos elementos traço é muito mais complexo e controlado por outros mecanismos como a co-precipitação, os efeitos de superfície e a interação com fases orgânicas (Plant & Raiswell, 1983).

Um guia aproximado para a mobilidade é dado pelo potencial iônico, que é obtido pela razão entre carga iônica e raio iônico, sendo que diferenças no estado de oxidação (valência) também resultam em mobilidades diferentes (Rose *et al.*, 1979; Goldschmidt, 1954; Mason & Moore, 1982; Govett, 1983; Carvalho, 1995; Krauskopf & Bird, 1995). Dos fatores que governam a mobilidade dos elementos em solução, talvez o conjunto pH e Eh seja o mais importante. Assim, a especiação química de muitos elementos no ambiente

superficial pode ser representada por meio de diagramas de Eh vs. pH. Entretanto, o emprego desses diagramas deve ser criterioso, pois em muitas situações naturais o controle dos estados de oxidação e redução (redox) e das reações de dissolução/precipitação dependem muito mais da cinética do que dos fatores de equilíbrio. Além disso, diagramas de Eh-pH são válidos apenas para condições especiais de temperatura e pressão (25°C e 1 atm) e com concentrações iônicas controladas. Portanto, quaisquer variações na composição iônica podem alterar os relacionamentos da estabilidade (Plant & Raiswell, 1983).

Considerando as condições ambientais relativas ao Eh e pH, a mobilidade dos radionuclídeos tratados no presente estudo pode ser descrita da seguinte forma: em condições de pH tanto de 5 a 8 como < 4 , os elementos ^{222}Rn , ^{238}U , ^{40}K e ^{232}Th são, respectivamente, altamente móvel, moderadamente móvel, pouco móvel e muito pouco móvel. E, em condições redutoras, os elementos ^{222}Rn , ^{226}Ra , ^{40}K e ^{232}Th são, respectivamente, altamente móvel, moderadamente móvel, pouco móvel e muito pouco móvel (Rose *et al.*, 1979).

A matéria orgânica é outro importante fator a ser considerado no estudo da mobilidade e dispersão de elementos no ambiente por ser constituinte importante de alguns solos, sedimentos de fundo de drenagens, águas naturais superficiais, efluentes domésticos e depósitos de resíduos sólidos urbanos. Devido às suas propriedades singulares quando comparada com outros materiais naturais, mesmo em quantidades muito reduzidas, a matéria orgânica pode influir significativamente na química dos elementos traço. Tais efeitos incluem a complexação de íons traço por matéria orgânica dissolvida, o que resulta em aumento de mobilidade dos elementos e adsorção ou formação de compostos orgânicos, resultando em imobilização e redução a estados de valência mais baixa, com mudanças nas propriedades químicas. Provavelmente, a maior parte da matéria orgânica dos solos, águas e sedimentos de fundo, é composta por substâncias húmicas que formam-se pela degradação dos materiais das plantas e pela atividade microbiana (Gamble e Schnitzer, 1973 *apud* Rose *et al.*, 1979) e por resíntese. Dividem-se em três grupos: ácidos húmicos, ácidos fúlvicos e humina. As substâncias húmicas são uma mistura complexa de compostos de modo que suas propriedades físico-químicas são aquelas da mistura ao invés das de um composto simples (Rose *et al.*, 1979). A abundância de radicais $-\text{COOH}$ e $-\text{OH}$ dá aos ácidos húmicos e fúlvicos suas propriedades ácidas e também as de adsorver, complexar e quelar os metais, já que quando dissolvidos na água, os componentes húmicos e fúlvicos têm carga negativa (Gamble e Schnitzer, 1973 *apud* Rose *et al.*, 1979).

A presença de argilo-minerais, aluminosilicatos que compõem a fase coloidal dos solos e águas, também é um importante fator de influência na mobilidade e dispersão de elementos. As argilas cauliníticas (filossilicatos com estrutura do tipo 1:1) mostram capacidades sortivas (ou CTC, capacidade de troca catiônica) menores, pois apenas uma camada carregada está exposta aos processos de sorção e as posições de troca já estão ocupadas por íons hidrogênio. Argilas esmectíticas ou montmoriloníticas (filossilicatos com estrutura do tipo 2:1) apresentam capacidades de troca maiores, já que têm duas camadas disponíveis e maior deficiência de carga. Assim, e de modo geral, solos e sedimentos produzidos em ambientes sob intemperismo monossialítico (com predomínio das caulinitas) mostram capacidades sortivas, devidas às argilas, menores que aqueles de intemperismo bissialítico (com predomínio das esmectitas) (Bittencourt, 1998).

Além dos fatores citados, deve-se também considerar o efeito da permeabilidade e porosidade do meio na mobilidade e dispersão de elementos. A circulação e migração dos fluidos, em qualquer meio sólido, está diretamente relacionada com a capacidade desse meio de armazenar fluidos nos seus vazios estruturais (porosidade) assim como da possibilidade desses fluidos migrarem e circularem através desse meio sólido (permeabilidade). Quanto mais permeável um meio, maior a possibilidade de migração dos fluidos contidos e por consequência maior a possibilidade de interação desse fluido com o meio sólido hospedeiro. A intensidade do ataque (intemperismo químico) do meio sólido pelo fluido circulante e da remoção da carga iônica produzida por esse ataque será uma função direta da porosidade e da permeabilidade do meio sólido, assim como do poder corrosivo da solução migrante (Licht, 2001).

Contudo, no que diz respeito à mobilidade de radionuclídeos no ambiente, esta irá depender basicamente do tempo de meia vida do elemento, suas propriedades químicas e físicas, além de características do meio onde estão dispersos, tais como: litologia, relevo, clima, vegetação e organismos presentes no meio (Lauria, Martins & Zenaro, 2003; Rebelo *et al.*, 2003). Naturalmente, quanto menor o tempo de meia-vida do radioisótopo, menor a distância que ele é capaz de migrar no ambiente. No entanto, uma vez no ambiente, a mobilidade do radionuclídeo será influenciada, principalmente, por uma série de interações físico-químicas complexas, as quais estão relacionadas com as características do radionuclídeo e com as características do meio dispersor, seja ele da fase líquida (água), gasosa (ar), sólida (solo ou sedimento) ou da biota. No meio sólido, as concentrações elevadas de cátions, tais como Ca, Mg, Na e K, podem ser responsáveis por sítios de sorção superficial de material particulado e sedimentos impedindo a sorção do isótopo, mantendo-o, desta forma, em solução. Uma vez estando em solução, vários fatores podem ser responsáveis pela permanência ou remoção do isótopo, os quais se relacionam diretamente com as características químicas do elemento em questão (Lauria *et al.*, 2003).

Características individuais do radionuclídeo associadas às características do meio são responsáveis pela distribuição entre o sedimento e a água (representado pelo K_d), entre o solo e a planta (representado pela razão solo-planta) e entre organismos e água e/ou sedimento (bioacumulação) (Lauria *et al.*, 2003).

1.4.6.1 Urânio

O urânio é um elemento metálico radioativo pertencente ao grupo III B da Tabela Periódica, mais especificamente à família dos Actínídeos. Possui número atômico 92 e massa atômica 238,03. Sua configuração eletrônica é dada por $5f^3 6d^1 7s^2$; densidade de $19,05 \text{ g.cm}^{-3}$ (20°C); pontos de fusão a 1.132°C e de ebulição 3.818°C (Duarte, 2002). O urânio natural é uma mistura dos isótopos ^{238}U , ^{235}U e ^{234}U indistinguíveis quanto ao comportamento químico (Coward & Osmond, 1974). Possui várias valências (+2, +3, +4, +5 e +6), sendo mais freqüente na natureza seu estado de oxidação +4 e +6 (Krauskopf, 1972) e obtidos apenas em condições laboratoriais os estados de oxidação 2+ e 3+ (Nash *et al.*, 1981). Embora Langmuir (1978) e Calas (1979) tenham enfatizado que o estado de oxidação 5+ possa ser o mais importante, a geoquímica do urânio tem sido descrita em termos dos estados de oxidação 4+ e 6+, uma vez que a transição de 4+ para 6+ tem um potencial de oxi-redução compreendido no intervalo normal de variação dos ambientes geológicos, podendo-se esperar, desta forma, a presença de compostos destes dois estados de oxidação na natureza (Krauskopf, 1972).

O comportamento do urânio e seu estado de oxidação mudam de um ambiente geológico para outro devido suas características químicas (Nash *et al.*, 1981). Em minerais ígneos primários, está presente no estado 4+, constituindo o íon uranoso (U^{4+}) com potencial iônico 4 e raio iônico $1,05 \text{ \AA}$, próximo ao do cálcio e das terras raras trivalentes (Goldschmidt, 1954). Embora existam vários íons metálicos similares ao urânio, em termos de raio iônico, alta carga positiva e/ou características de coordenação, este elemento resiste à incorporação como um substituto de outros íons metálicos na maioria das rochas comumente formadas e em depósitos minerais, tendendo, ao invés disto, formar seus próprios minerais (Nash *et al.*, 1981).

A abundância crustal média do urânio corresponde a $2,5 \text{ }\mu\text{g/g}$, possuindo esse elemento dois isótopos primários, o ^{238}U e o ^{235}U , os quais ocorrem atualmente na proporção de 99,3% de ^{238}U para 0,7% de ^{235}U . Embora o ^{235}U seja o isótopo físsil que forma a base de produção de energia nuclear, e, por isso, extremamente importante do ponto de vista tecnológico, verifica-se que a sua contribuição como fonte natural de radioatividade é pequena, pois a atividade específica do ^{238}U é cerca de 20 vezes maior que a do ^{235}U . No

entanto, o ^{238}U e o ^{235}U são geradores de séries de decaimento radioativo, possuindo o ^{238}U um número maior de produtos de decaimento, muitos dos quais de longa meia-vida (Bonotto, 2004). Na Tabela 1.3, pode-se observar as concentrações médias de urânio para alguns tipos de rochas ígneas, sedimentares e metamórficas.

Tabela 1.3: Concentrações médias de urânio nos principais tipos de rochas ígneas, sedimentares e metamórficas (modificado de Rogers & Adams, 1969b).

ROCHAS		U (ppm)
ÍGNEAS	Graníticas	4,19
	Gabróides	0,84
	Ultramáficas	0,022
	Ecoglitos	0,20
	Intrusivas alcalinas	9,82
	Extrusivas silicáticas	5,0
	Basálticas	0,43
SEDIMENTARES	Arenitos	1,48
	Grauvacas	2,1
	Arcóseos	1,5
	Folhelhos	3,25
	Calcários	2,19
	Dolomitos	0,03 – 2,0
	Fosfáticas	50 – 300
	Evaporitos	< 1,0
METAMÓRFICAS	Anfibolito	3,5
	Gnaisse	2,2
	Paragnaisse	4,5
	Granulito	4,9
	Ortognaisse	3,6
	Cordierita gnaisse	5,8
	Mármore	0,17
	Filito	1,9
	Xisto	2,5
	Rochas máficas	3,2

O ^{238}U é considerado um elemento primário, sendo o dióxido (UO_2) o principal composto em depósitos (Krauskopf, 1972), uma vez que o urânio não ocorre naturalmente como um elemento nativo, pois ao reagir com a água forma um óxido ou hidróxido (Nash *et al.*, 1981).

Desta forma, o urânio é constituinte essencial em quase 100 minerais, ocorrendo principalmente na variedade bem cristalizada uraninita (UO_2) e na sua forma microcristalina pechblenda. Contudo, o UO_2 , contém pequenas quantidades de rádio, tório, polônio, chumbo e hélio. Ocorrendo uma oxidação incipiente e perda de urânio por decomposição radioativa pode ser que ocorra um aumento da relação oxigênio-urânio, de modo que, a relação oxigênio / urânio pode se alterar no dióxido (UO_2), modificando a composição para U_3O_8 (Krauskopf & Bird, 1995). Outras importantes formas de ocorrência mineral do urânio são: a cofinita $[\text{U}(\text{SiO}_4)_{1-x}(\text{OH})_{4x}]$, a uranotorita $[(\text{Th}, \text{U})\text{SiO}_4]$ e a uranotorianita $[(\text{Th}, \text{U})\text{O}_2]$ (Bonotto, 1996).

O urânio lixiviado de qualquer rocha sob condições oxidantes sofre precipitação num ambiente redutor, conforme se verifica, por exemplo, em arenitos ricos em matéria orgânica ou em sulfetos de Fe; os teores de U nesses depósitos geralmente variam entre 0,05% e 0,2%. Em sedimentos de granulação mais fina, como folhelhos formados em bacias anóxicas, o U concentra-se geralmente na matéria orgânica, atingindo níveis de 30 a 60 µg/g (Bowie & Plant, 1983). Folhelhos contendo fosfatos derivaram seu urânio da água do mar, em razão da tendência que leva o U a formar complexos do tipo $(\text{UO}_2\text{HPO}_4)_2^{2-}$ em água a pH relativamente alto; a maioria dos depósitos de fosforitos contém de 10 a 60 µg/g de U, embora alguns apresentem teores de 2.500 µg/g ou mais. Lignitas formadas sob condições redutoras são também enriquecidas em U, porém, os teores são mais variáveis que os encontrados nos folhelhos e fosforitos, situando-se entre alguns µg/g e 1%; valores dessa ordem ocorrem geralmente apenas em veios de urânio, os quais comumente variam entre 0,07% e 2%, e em pegmatitos, cuja abundância é pequena (Bonotto, 2004).

Nas águas superficiais e subterrâneas oxidantes, ocorre o transporte de urânio como íons uranila, sob a forma de vários complexos solúveis com os ânions comumente dissolvidos. Em condições ácidas, os principais complexos de uranila são formados com o fosfato e em condições alcalinas são formados com o carbonato (Langmuir, 1978). Os teores de urânio nas águas subterrâneas variam bastante, dependendo da litologia e/ou proximidade a jazidas desse elemento, considerando-se muitas vezes como anômalos os valores acima de 4 µg/L. Em condições continentais áridas, teores acima de várias centenas de U têm sido registrados, chegando a atingir 2.000 mg/l ou mais nas proximidades de jazidas de urânio (Bowie & Plant, 1983).

Em virtude da solubilidade dos minerais de urânio, esse elemento pode ser transportado por água superficial ou subterrânea até ambientes redutores, onde se precipita na forma de pechblenda ou cofinita ($\text{USiO}_4 \cdot n\text{H}_2\text{O}$) (Krauskopf, 1972).

O U^{4+} forma soluções sólidas com elementos tetravalentes como Ce, Zr e Th, por exemplo, nos minerais acessórios cerianita, zircão e uranotorianita, os quais são altamente resistentes ao intemperismo e, por isso, não se encontram alterados nos sedimentos e depósitos aluviais. Contudo, alguns silicatos e fosfatos contendo terras raras ou Zr juntamente com U e Th, como torita, monazita e zircão, perdem sua cristalinidade em decorrência da radiação interna, tornando-se metamitizados; com isso, o mineral vítreo formado passa a ser quimicamente reativo e se altera ou hidrata. Nos minerais mais solúveis de urânio como uraninita ou pechblenda e cofinita, sob condições de intemperismo, o urânio se oxida para o estado de valência 6+, constituindo o íon uranila (UO_2^{2+}), com raio iônico de 0,80 Å e potencial iônico 7 (Rösler & Lange, 1972). A transição de U^{4+} para U^{6+} ocorre de acordo com a reação:



sendo potencial de óxido-redução Eh corresponde a 0,273 volts (Fuger & Oetting, 1976). O íon uranila ocorre em minerais secundários como autunita $[\text{Ca} (\text{UO}_2)_2 (\text{PO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}]$ e carnotita $[\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{VO}_4)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}]$, formados principalmente nos climas áridos onde a evapotranspiração concentra o urânio e precipita ligantes como vanadatos e fosfatos, entre outros (Bonotto, 2004).

Apesar de apenas fatores químicos não fornecerem explicação da origem dos depósitos de urânio, eles são importantes, pois o minério superficial pode ser derivado por oxidação de depósitos originais de sedimentos ricos em matéria orgânica, ou, no caso do minério não-oxidado, pode ser derivado pela lixiviação e redução de depósitos originais de material oxidado em arenito. Embora os mecanismos de oxidação, dissolução, precipitação e redução possam ser explicados pelo comportamento químico do urânio, a seqüência dos eventos deve ser estabelecida a partir das relações geológicas (Duarte, 2002).

1.4.6.2 Tório

O tório é um elemento metálico radioativo pertencente ao grupo III B da Tabela Periódica, mais especificamente à família dos Actinídeos. Possui número atômico 90, massa atômica 232,04 e número de coordenação 6. Sua configuração eletrônica é dada por $6d^2 7s^2$; densidade de $11,5 - 11,9 \text{ g.cm}^{-3}$ (17°C); pontos de fusão a $1740 - 1760^\circ\text{C}$ e de ebulição $4780 - 4800^\circ\text{C}$ e ocorre na natureza apenas no estado de oxidação +4. É um elemento instável, sendo o ^{232}Th o precursor da série natural de decaimento que após 12 desintegrações (7 do tipo α e 5 do tipo β^-) origina o ^{208}Pb , sendo que na mesma série ocorre outro isótopo natural de tório, o ^{228}Th (Duarte, 2002).

A química do tório no ambiente é completamente controlada pelas limitações de solubilidade e reações de sorção. Este elemento encontra-se, preferencialmente, ligado à fase sólida e comporta-se como outras espécies tetravalentes como U^{4+} , Ti^{4+} e Zr^{4+} . Tem grande afinidade por colóides, e em solução e na presença de Si, Fe e Al, encontra-se majoritariamente associado à fase coloidal, principalmente quando trata-se de colóides orgânicos (Lauria *et al.*, 2003). Desta forma, o tório é constituinte traço em soluções sólidas em minerais fosfatados, óxidos e silicatos, e, ainda, em argilas e colóides do solo. Como elemento maior, ocorre em poucos e raros minerais como a torianita (ThO_2) isomórfico com o urânio e a torita (ThSiO_4) isomórfico com o zircão, sendo, por esta razão, encontradas

incorporadas à estrutura do zircão em grande parte das ocorrências naturais de tório (Langmuir & Herman, 1980).

Em grande parte dos sistemas naturais, o tório está preferencialmente adsorvido à fase sólida. Mas, se o fluido contiver elevadas concentrações de matéria orgânica dissolvida e/ou sulfato é possível que parte do tório permaneça dissolvida na fase aquosa (Lauria *et al.*, 2003).

A principal fonte de tório na natureza é a monazita (Ce, La, Y, Th)PO₄, a qual contém de 3 a 9% podendo chegar a 20% de ThO₂ associado aos elementos terras raras. Contudo, minerais ígneos de UO₂ podem formar uma solução sólida completa com ThO₂ (Rogers & Adams, 1969a; Lauria *et al.*, 2003).

Os minerais hospedeiros de tório, em sua maioria, são altamente refratários ao intemperismo. Por esta razão, este elemento foi considerado por muito tempo como imóvel e bastante insolúvel em águas naturais, como atestam dados de concentrações mínimas ou inexistentes nestes ambientes (Conceição, 2004). A concentração de tório em condritos é da ordem de 0,04 ppm, enquanto que nos acondritos é superior a esta. A Tabela 1.4 apresenta a concentração média de Th e a razão Th/U para alguns tipos de rochas ígneas, sedimentares e metamórficas.

Ao contrário do urânio, o tório é solubilizado somente em condições muito específicas de pH (> 3) e na presença de agentes complexantes (Langmuir & Herman, 1980). Contudo, a mobilidade desse elemento não é controlada apenas por complexos solúveis mas, também, por estruturas sólidas, tais como minerais transformados ou neoformados, amorfos ou coloidal, incluindo oxi-hidróxidos e óxidos de ferro (Short *et al.*, 1989).

O tório ocorre nas areias monazíticas no Brasil, Índia e Estados Unidos e pode ser usado como combustível em reatores nucleares, uma vez que o ²³²Th captura nêutrons lentos e alimenta ²³³U. A tória ou dióxido de tório, ThO₂, é usada em refratários especiais (Duarte, 2002).

Tabela 1.4: Concentração média de Th e razão Th/U para alguns tipos de rochas ígneas, sedimentares e metamórficas (Fonte: Adaptado de Rogers & Adams, 1969a)

ROCHAS		Th (ppm)	Th/U
ÍGNEAS	Graníticas	21,5	4,62
	Ultramáficas	0,05	Baixa
	Ecoglitos	0,37	2,90
	Alcalinas intrusivas	17,1	----
	Basálticas	1,58	3,80
	Gabróicas	3,84	4,30
SEDIMENTARES	Arenitos	1,70	3,80
	Grauvaca vulcânica	9,50	2,82
	Arcóseos	2,60	~2,00
	Folhelhos	11,80	4,70
	Calcários	1,75	0,90
	Fosfáticas	1,00 – 5,00	<0,10
METAMÓRFICAS	Anfibolito	5,00	1,40
	Gnaisse	6,40	0,90
	Paragnaisse	21,00	4,30
	Granulito	5,50	1,50
	Ortognaisse	21,80	3,80
	Mármore	5,50	2,80
	Filito	7,50	3,00
	Xisto	10,00	3,10
	Rochas máficas	13,10	4,75

1.4.6.3 Potássio

O potássio, elemento metálico prateado e mole pertencente ao grupo I A na Tabela Periódica, dos Metais Alcalinos, possui número atômico 19, massa atômica 39,1, raio iônico 1,33 Å, potencial iônico de 0,75, número de coordenação variando entre 8 e 12, configuração eletrônica 4s¹, densidade de 0,87 g.cm⁻³, pontos de fusão a 63,7°C, e de ebulição a 760°C. O “clarke” do potássio é de 2,59, estando entre os oito elementos mais abundantes da crosta terrestre, que juntos perfazem 99% do total de elementos presentes em rochas (Mason, 1971). Quimicamente é muito reativo, com comportamento semelhante ao do sódio e em seus compostos. Também forma o superóxido KO₂ de coloração laranja que contém o íon O₂⁻ (Duarte, 2002).

Existem três isótopos naturais de potássio, de números de massa 39, 40 e 41, cujas abundâncias são 93,1%, 0,01% e 6,9%, respectivamente.

O ⁴⁰K é o isótopo radioativo do potássio de ocorrência natural. Sua meia vida é de 1,15 x 10¹⁰ anos. Aproximadamente 89% dos átomos de ⁴⁰K decaem por emissão de uma partícula β⁻ para formar átomos de ⁴⁰Ca, enquanto que os 11% restantes desintegram-se por captura eletrônica para formar átomos de ⁴⁰Ar, com emissão de um fóton gama de energia

1,46 MeV (Figura 1.4). Desde que não ocorra separação de isótopos de potássio no ambiente natural, o fluxo de radiação gerado pelo ^{40}K no volume de rocha está na proporção direta da quantidade de potássio presente (Hiodo, 1989).

O potássio ocorre na água do mar e em vários minerais como a silvita (KCl), carnalita ($\text{KCl} \cdot \text{MgCl}_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$) e carnita ($\text{MgSO}_4 \cdot \text{KCl} \cdot 3\text{H}_2\text{O}$), o salitre, a polialita, a alunita, a carnotita, a apofilita, a muscovita, a flogopita, a biotita, a lepidolita, o microclínio, o ortoclásio, a leucita, entre outros que possuem o potássio em sua composição. Alguns dos quais são importantes como formadores de rochas (Duarte, 2002).

Este elemento ocorre nos feldspatos potássicos que têm simetria monoclinica (sanidina e ortoclásio) e triclínica (microclínio). A sanidina representa a fase de alta temperatura e baixa pressão; já o ortoclásio e o microclínio são modificações de médias e baixas temperaturas, respectivamente. Em altas temperaturas, pode ocorrer uma solução sólida completa entre o feldspato potássico monoclinico (sanidina e ortoclásio) e o feldspato sódico triclínico (albita). O feldspato intermediário é chamado anortoclásio. Em baixas temperaturas, o anortoclásio se exsolve em lamelas subparalelas, de composição alternadamente sódica e potássica (pertitas e antipertitas). A similaridade dos raios iônicos do potássio e do bário gera um isomorfismo entre o ortoclásio e o celsiana, o feldspato de bário (Cocco *et al.*, 1969).

No grupo das micas, o potássio também é um elemento de grande importância na formação mineral, com a composição geral dada pela fórmula $\text{W}(\text{X},\text{Y})_{2-3}\text{Z}_4\text{O}_{10}(\text{OH},\text{F})_2$, onde W geralmente é representado pelo potássio, uma vez que as micas mais comumente encontradas nas rochas apresentam o potássio em sua composição química (Duarte, 2002).

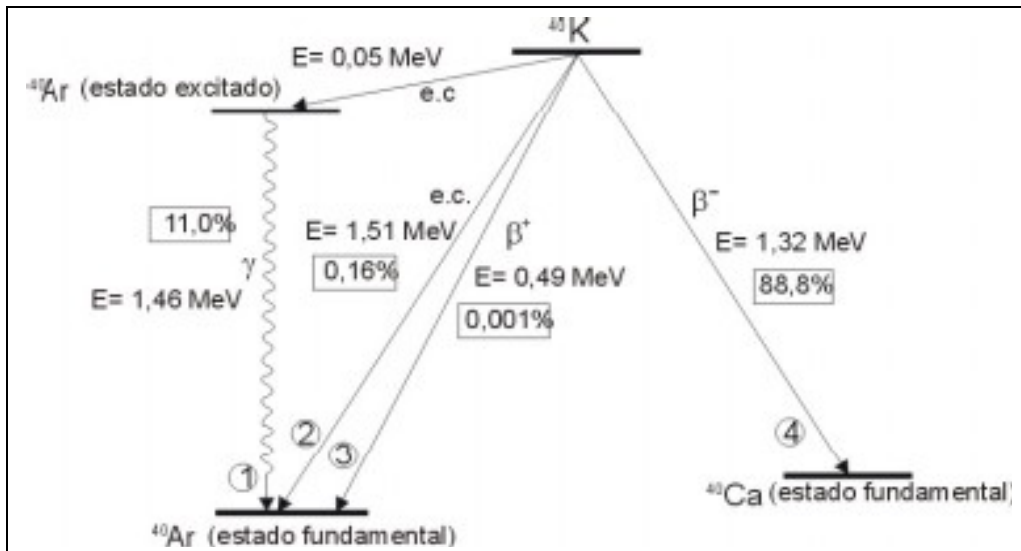


Figura 1.4: Esquema de decaimento do ^{40}K , por intermédio dos seguintes modos: (1) captura eletrônica com emissão de raios γ , (2) captura eletrônica sem emissão de raios γ , (3) emissão de pósitron, e (4) emissão beta. Também estão indicadas as energias, E, para cada estado de decaimento e a porcentagem de ^{40}K que decai para cada estado (Fonte: Dalrymple & Lanphere, 1969).

A Tabela 1.5 apresenta a porcentagem de potássio para alguns dos principais tipos de rochas ígneas e sedimentares.

Tabela 1.5: Porcentagem de potássio em alguns dos principais tipos de rochas ígneas e sedimentares (Heier & Billings, 1969)

ROCHAS		K (%)
ÍGNEAS	Granitos	3,40
	Granitos cálcio alcalinos	4,53
	Álcali granito	4,26
	Granitos peralcalinos	3,49
	Granodioritos	2,50
	Tonalitos	1,50
	Sienitos	3,73
	Monzonitos	3,50
	Dioritos	1,40
	Gabros	0,60
	Kimberlitos	0,97
	Riolitos	3,80
	Traquitos	4,76
	Fonolitos	4,40
	Andesitos	1,80
	Basaltos	1,26
SEDIMENTARES	Arenitos	1,48
	Sedimentos argilosos	2,81
	Folhelhos	2,45
	Calcários	0,31

O potássio presente em rochas e sedimentos carbonáticos está exclusivamente contido na fração não-carbonática. Já em folhelhos, o potássio é principalmente dado pelo argilo mineral contido, sendo também afetado pela presença de feldspato potássico. Em areias e arenitos, a presença do potássio é dada por três minerais: o feldspato potássico, a mica potássica (illita) e a glauconita. Entretanto, existe uma relação entre a área fonte, os

eventos tectônicos, o relevo e clima associados à formação destas rochas. Areias formadas nas fases inicial e final de ciclos tectônicos contém quantidades expressivas de feldspato potássico. O potássio também tem importância relevante nos evaporitos, onde os minerais potássicos são extremamente solúveis e, portanto, lixiviados dos sedimentos para as águas superficiais e subterrâneas (Duarte, 2002).

O elemento tem poucos usos, mas os sais de potássio são usados em muitas aplicações. Além disso, o potássio é um elemento essencial nos organismos vivos (Duarte, 2002).

1.4.6.4 Rádio

O rádio é o elemento mais pesado do grupo dos Alcalinos Terrosos da Tabela Periódica e possui uma química relativamente simples. Apenas o estado de oxidação +2 é conhecido. O maior raio iônico do rádio em relação aos demais alcalinos terrosos (Ca, Mg, Sr e Ba), sugere que as ligações do Ra são mais iônicas ou eletrostáticas. Está presente em todos os minérios de urânio e pode ser extraído deles (aproximadamente 1g de rádio pode ser obtido de 7 t do minério de urânio). Sua abundância na crosta terrestre é estimada em 9×10^{-7} mg/kg e nas águas marinhas a sua concentração é cerca de $8,9 \times 10^{-11}$ mg/l. Em águas naturais a concentração de Ra varia entre 4×10^{-18} M e 4×10^{-13} M., sendo que tais concentrações dependem da fase sólida por onde a água circula, uma vez que águas que circulam em rochas com maiores teores de U e Th, como as graníticas, tendem a ter maiores concentrações dos isótopos do que aquelas que circulam em aquíferos com rochas pobres em U e Th, como as carbonáticas (Michel, 1984; Lauria *et al.*, 2003).

O radionuclídeo ^{226}Ra , produto de decaimento do ^{238}U , é considerado o mais importante dos quatro isótopos de rádio derivados das séries de decaimento do urânio e tório, devido a sua longa meia-vida e a abundância natural do seu precursor. De todas as espécies aquosas e sólidas conhecidas, apenas o íon Ra^{+2} e RaSO_4 parecem ter alguma significância no ambiente. Contudo, o RaCO_3 como componente de uma solução sólida e os complexos RaOH^+ , RaCl^- , RaCO_3 e RaSO_4 podem influenciar na mobilidade do rádio em solução. Como os níveis de rádio no ambiente são extremamente baixos, este comporta-se como um elemento traço, cuja química é controlada por processos de co-precipitação e adsorção superficial. A co-precipitação com sais de Ba é comum, podendo também ocorrer alguma co-precipitação com Ca, Mg e até mesmo com Fe e Mn. Dentre os elementos das séries naturais, o rádio é de maior mobilidade no ambiente e, dependendo das características do fluido e da fase sólida, pode ser facilmente removido da fase sólida para a fase aquosa. No entanto, em condições de pH baixo ocorre a permanência do Ra em

solução (Lauria *et al.*, 2003). Vale ressaltar que compreender o comportamento do ^{226}Ra em solos superficiais é importante porque há perda de seus produtos radioativos, especialmente o ^{222}Rn para o ambiente, o qual representa uma estimativa média de 55% da dose de radioatividade natural (NCRP, 1987). Além disso, juntamente com o ^{40}K , o ^{226}Ra pode ser incorporado à cadeia alimentar através dos vegetais e se constituir, desta forma, em uma importante fonte de radioatividade (Linsalata, 1994). Em estudo específico sobre o tema, foi verificado que ocorreu um aumento de ^{226}Ra no horizonte A dos solos. Contudo, este estudo não relata quais fatores estão relacionados a este resultado (Michel, 1984). Os horizontes superficiais dos solos podem ser enriquecidos em ^{226}Ra devido ao processo de circulação desse radionuclídeo promovido pela vegetação, uma vez que o mesmo pode ser transportado dos horizontes profundos para os mais superficiais através da adsorção às raízes dos vegetais (Greeman *et al.*, 1999).

1.4.6.5 Radônio

O radônio é um gás nobre, o mais pesado gás conhecido e está sempre associado aos minérios de urânio e tório. Dos três isótopos (^{222}Rn , ^{220}Rn e ^{219}Rn) produzidos nas três séries radioativas naturais, o ^{222}Rn da série do ^{238}U é o mais abundante que ocorre na natureza, cujo tempo de meia-vida é de 3,4 dias. A interface solo-gás está normalmente entre 10.000 e 150.000 Bq.m^{-3} , dependendo basicamente da concentração de urânio no solo. Sendo um gás nobre, é inerte. Portanto, no meio líquido não participa de processos químicos, tais como precipitação e complexação e pode ser livremente transportado. No entanto, devido a sua curta meia-vida não é transportado a grandes distâncias, sendo sua concentração diretamente correlacionada com a composição da fase sólida (Lauria *et al.*, 2003).

O Rn liberado da litosfera migra e se dispersa no ambiente governado por suas próprias características e pelas características do ambiente atmosférico, sendo sua dispersão no ar dependente das condições meteorológicas. O *background* natural do Rn é afetado por variações diurnas significantes, variações no clima, características geológicas e meteorológicas, além de outros fatores. Como o Rn e seus filhos radioativos são responsáveis pela maior fração de exposição humana à radiação natural (53%), as consequências radiológicas do Rn em locais de trabalho, fora e dentro de residências têm sido intensivamente estudadas (Lauria *et al.*, 2003).

O ^{222}Rn é empregado como traçador atmosférico em regiões subantárticas, para monitoramento de estudos de transportes atmosféricos. No trabalho de Silva (1998),

eventos denominados Tempestades de Radônio, foram empregados para identificação de impactos ambientais atmosféricos na Ilha Rei George (Antártica) como produto da ação antrópica local e para caracterização do transporte atmosférico de larga escala global. Este autor estudou a contribuição máxima da atividade do ^{222}Rn produzido, exclusivamente pelas fontes locais representadas pelos afloramentos de rocha que se verificam em grande parte das regiões subantárticas.

1.4.7 Metais pesados

A expressão “metal pesado” está geralmente associada à poluição e toxicidade. Contudo, aplica-se a elementos químicos com peso específico maior que 6 g.cm^{-3} e engloba metais, semi-metais e mesmo ametais como o selênio (Ferreira *et al.*, 2001). Alguns destes elementos, tais como cobre, ferro, manganês e níquel, em pequenas proporções, são essenciais à vida de organismos. Porém, em grandes concentrações podem alcançar níveis tóxicos às plantas e aos organismos (Ferreira & Cruz, 1991).

Os metais pesados são altamente reativos do ponto de vista químico, o que explica a dificuldade de encontrá-los em estado puro na natureza. Normalmente, apresentam-se em concentrações muito pequenas associados com outros elementos químicos ou formando minerais em rochas (Alloway, 1993). No solo sem interferência antropogênica, a concentração total inicial dos metais pesados depende, dentre outros fatores, do material de origem e da pedogênese (Kabata-Pendias & Pendias, 1992; Benton, 2000).

De acordo com o grau de toxidez, os metais pesados podem ser classificados em três grupos: (i) os considerados de pouca toxidez e, na maioria, são tidos como micronutrientes, mas em concentrações elevadas são tóxicos. Pertencem a este grupo: alumínio, cobalto, cobre, manganês, molibdênio, selênio, vanádio, zinco e estanho; (ii) os que apresentam probabilidade de riscos de câncer, que são: arsênio, berílio, cromo e níquel e (iii) os metais que apresentam um caráter tóxico significativo e não se enquadram nos grupos anteriores: chumbo, cádmio, mercúrio e tálio (Bedlingmaer, 1990 *apud* Grossi, 1993).

Quanto à origem, os metais presentes no solo podem ser divididos em litogênicos e antropogênicos. A fração litogênica é oriunda de fontes geológicas, como resíduo de rocha, ou é liberada por ocasião do intemperismo. Desta forma, o material de origem do solo é muito importante na delimitação da concentração dos elementos na solução do solo.

Embora a presença dos metais pesados seja generalizada nos solos em condições naturais, as atividades humanas acabam, de alguma forma, favorecendo o aumento das concentrações desses elementos neste compartimento ambiental e, conseqüentemente, comprometem a qualidade do ecossistema. As principais fontes antropogênicas de metais

no solo são mineração e beneficiamento de metais, aplicação de defensivos agrícolas e fertilizantes, lodos de esgotos urbanos e/ou industriais, queima de combustíveis fósseis, águas residuárias, resíduos de indústrias de beneficiamento químico, manufatura e disposição de artigos eletrônicos, de caça e pesca e de treinamento militar e de guerra. Os metais utilizados nestes processos, ou aqueles presentes nos processos geoquímicos naturais, atingem o ambiente de alguma maneira.

1.4.8 Mobilidade e dispersão dos metais pesados no ambiente superficial

Os metais pesados no solo estão associados a diversas formas geoquímicas: solúvel, trocável, ligados à matéria orgânica, associada a óxidos, hidróxidos e oxihidróxidos de ferro, manganês e alumínio, carbonatos e sulfetos. Sob a forma solúvel apresentam-se como íons livres, ou como complexos solúveis com ânions inorgânicos ou ligantes orgânicos. Sob a forma trocável apresentam-se retidos, predominantemente, por força eletrostática aos colóides do solo. Podem, ainda, estar fixados pelos minerais do solo, precipitados com outros componentes e complexados com a matéria orgânica (Benton, 2000). Podem, também, ocorrer adsorvidos em sítios específicos através de ligações predominantemente covalentes (Miller *et al*, 1986 apud Mazur, 1997) ou apresentam-se adsorvidos à superfície dos óxidos de ferro, alumínio e manganês (Chao, 1972).

O controle da disponibilidade e mobilidade de metais pesados nos solos é feito por processos interativos e dinâmicos de adsorção e dessorção, precipitação, dissolução e complexação (Barrow, 1989; Hering, 1995) que, por sua vez, são influenciados por diferentes atributos químicos do solo, tais como atividade da fração argila, concentração de matéria orgânica, de hidróxido de Fe, Al, Mn e quelatos solúveis, sendo o pH e o potencial redox os mais relevantes porque também controlam a especiação química dos metais na solução do solo (Benton, 2000; Kabata-Pendias & Pendias, 2001) (Figura 1.5).

Dessa forma, a distribuição dos metais pesados em perfis de solos é variável, devido às diferenças na capacidade de retenção dos componentes das diversas camadas (Swaine & Mitchell, 1960; Barrow & Mitchell, 1980).

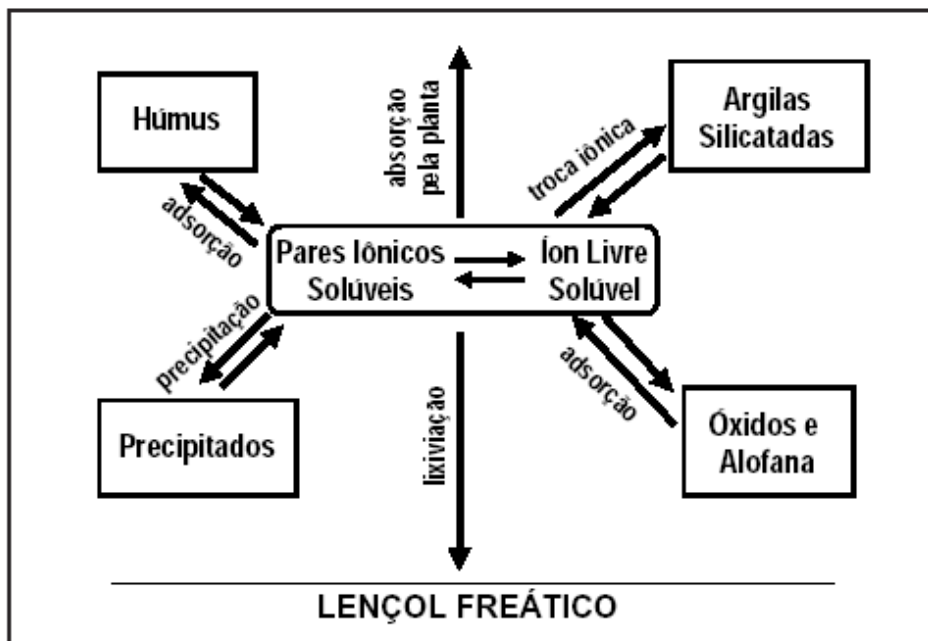


Figura 1.5: Processos dinâmicos interativos que governam a solubilidade, disponibilidade e mobilidade de metais pesados no solo (Fonte: McBride (1994)).

A concentração natural dos metais pesados no solo varia muito com o grau de intemperismo e a composição química do material de origem (Ross, 1992, Alloway, 1990, Kabata-Pendias & Pendias, 1997). A composição elementar total no solo tem utilidade limitada, mas é importante conhecê-la para se ter idéia do seu teor no ambiente, tanto em estudos de contaminação e poluição, quanto em estudos pedológicos. Porém, é a fração trocável ou solúvel de um elemento que pode representar um perigo iminente à cadeia alimentar. Por esta razão é importante avaliar seus teores disponível ou solúvel, uma vez que ambos vão estar relacionados com a mobilidade e com a absorção pelas plantas (Alloway, 1993).

1.4.8.1 Alumínio

O alumínio é um elemento metálico que ocorre na natureza nos estados de oxidação +1 e +3., sendo depois do oxigênio e silício, o elemento mais importante nas rochas crustais, cuja abundância média corresponde a 8% (Koljonen *et al.*, 1992). No ambiente superficial é um elemento de pequena mobilidade (Wedepohl, 1972), e seu conteúdo total no solo é reflexo do material de origem, podendo variar de 0,45 – 10% (Pais e Benton, 1997; Ross, 1997). Esse elemento está presente nos minerais silicatados, podendo estar combinado com o Fe, metais alcalinos e alcalino-terrosos (Koljonen *et al.*, 1992), além disso, durante a ação do intemperismo é comum a formar de óxidos e hidróxidos de carga e

composição variada, que podem fazer parte da estrutura dos argilominerais (Kabata-Pendias & Pendias, 1992).

1.4.8.2 Ferro

O Fe ocorre no solo nas formas de precipitados de óxido e hidróxido. Entretanto, em solos ricos em matéria orgânica, o Fe ocorre principalmente na forma de quelatos (Pais e Benton, 1997). O Fe que está presente nos compostos na forma férrica, possui pouca disponibilidade (OMS, 1983) e o conteúdo de Fe solúvel nos solos é extremamente baixo ($50 \mu\text{g.L}^{-1}$) em comparação com o conteúdo total de ferro (38 g.Kg^{-1}). Sob condições anaeróbias o Fe no estado de oxidação +3 (Fe^{+3}) é reduzido ao estado de oxidação +2 (Fe^{+2}), que é mais solúvel sob condições ácidas (Pais e Benton, 1997).

1.4.8.3 Manganês

O Mn comumente ocorre no solo como íons nas formas Mn^{2+} e Mn^{4+} , sendo o estado de oxidação +2 o mais freqüente (Alloway, 1990; Pais & Benton, 1997). Os teores deste elemento no solo dependem do tipo de compostos que estão presentes no solo e das características do solo. Em geral, acumula-se nos horizontes mais subsuperficiais (IPCS, 1997) e pode formar um grande número de óxidos e hidróxidos, sendo, provavelmente, como as formas em que ocorre no solo (Kabata-Pendias e Pendias, 1997). O conteúdo total de Mn no solo pode variar de 200 – 3000 mg.Kg^{-1} , com um valor médio de 500 - 900 mg.Kg^{-1} (IPCS, 1997).

1.4.8.4 Cádmio

O conteúdo de Cd nos solos está relacionado com a composição da rocha de origem. Devido à sua instabilidade nos compostos orgânicos, o Cd é encontrado na natureza na sua forma inorgânica, ocorrendo principalmente sob a forma de sal ou sulfeto, freqüentemente associado ao zinco ou ao chumbo. (Page & Bengham, 1992 *apud* Alloway, 1990; Kabata– Pendias e Pendias, 1997). Na solução do solo, Cd^{2+} (o mais importante estado de valência do Cd no meio ambiente) é associado às moléculas de água. Também pode estar presente na solução do solo como íon complexo na associação com outros ligantes (McLaughlin *et al*, 1996). O teor médio de Cd nos diversos solos do mundo está em $0,53 \text{ mg.Kg}^{-1}$ (Sillampara & Jansson, 1992 *apud* McLaughlin, 1996).

1.4.8.5 Cobalto

Na natureza o Co ocorre em dois estados de oxidação: Co^{2+} e Co^{3+} (Always, 1990; Pais & Benton, 1997; Kabata-Pendias & Pendias, 1992), sendo possível também a formação de complexos de Co. É relativamente móvel em ambientes ácidos, mas devido à alta afinidade pelos óxidos de ferro e manganês e também pelos argilominerais, a sua mobilidade e biodisponibilidade na maioria dos solos ricos em matéria orgânica são baixas. Os óxidos, hidróxidos e carbonatos de Co são todos muito insolúveis, sendo, portanto, o Co em condições alcalinas imóvel (Alloway, 1990; Kabata-Pendias & Pendias, 1992). Não é comum observar-se rochas formadas por cobalto mineral, em geral, elas são formadas principalmente com As, S e Se ficando o Co geralmente mascarado em vários minerais de Fe. Em geral o conteúdo de Co no solo é relacionado com o material de origem e sua concentração total na solução do solo varia na faixa de 0,05 a 300 mg.Kg^{-1} (Smith e Paterson, 1990) e o no solo varia de 1 – 40 mg.Kg^{-1} (Pais e Benton, 1997).

1.4.8.6 Níquel

O Ni ocorre naturalmente em vários tipos de solos e rochas, podendo ter alta mobilidade dentro do perfil do solo (OMS, 1998), aumentando sua concentração com a profundidade (IPCS, 1997; Pais e Benton, 1997). No solo, o elemento combina-se com matéria orgânica como óxido amorfo e com a fração argila, dependendo do tipo de solo (Kabata-Pendias & Pendias, 1997). Geralmente, a solubilidade do Ni no solo é inversamente relacionada ao pH, sendo os hidróxidos de níquel existentes em $\text{pH} > 6,7$ são predominantemente insolúveis. Altas concentrações de Ni em solos, geralmente é proveniente de contaminação antrópica. O conteúdo total de Ni no solo varia entre 1 – 200 mg.Kg^{-1} , com um valor médio de 20 mg.Kg^{-1} (Pais e Benton, 1997).

1.4.8.7 Cobre

Os solos derivados de rochas básicas são mais ricos em Cu que os derivados de granitos, gnaisses, calcários e arenitos (Pérez *et. al.*, 2006). O Cu, que no solo está quase exclusivamente na forma cúprica (Cu^{2+}), aparece em maior proporção adsorvido aos argilominerais, aos hidróxidos de ferro e à matéria orgânica. A quase totalidade do Cu solúvel está na forma de complexos com a matéria orgânica (Alloway, 1990) e é considerado o mais móvel dos metais pesados. Entretanto a forma Cu^{2+} é um cátion traço versátil e no solo ou como material depositado exhibe uma grande habilidade de interagir

quimicamente com componentes minerais e orgânicos do solo. Pode prontamente precipitar com vários ânions tais como sulfato, carbonato e hidróxido (Kabata-Pendias e Pendias, 1997). Os teores totais de cobre nos solos brasileiros estão dentro da faixa de 1 a 126 mg.Kg⁻¹, com uma média de 18 mg.Kg⁻¹. (Malavolta, 1980; Pais & Benton, 1997).

1.4.8.8 Chumbo

O Pb é amplamente distribuído nas rochas e solos e ocorre principalmente no estado de oxidação +2, embora o estado de oxidação +4 também possa ocorrer (Kabata –Pendias & Pendias, 1997). O Pb é o menos móvel dentre os metais pesados e encontra-se associado aos argilominerais, óxido de manganês, de ferro, hidróxido de alumínio e a matéria orgânica. A disponibilidade, solubilidade e a mobilidade do Pb são influenciadas pelo pH, diminuindo com o aumento do pH do solo. Este elemento pode precipitar como hidróxidos, fosfatos e carbonatos e pode também, formar complexos orgânicos que são bastante estáveis. O aumento da acidez pode aumentar a sua solubilidade, mas a mobilização é geralmente mais lenta (Kabata - Pendias & Pendias, 1997). O conteúdo total de Pb nos solos varia entre 3 – 189 mg.Kg⁻¹, sendo o nível natural entre 10 – 67 mg.Kg⁻¹ (Pais & Benton, 1997).

CAPÍTULO II

ASPECTOS FISIOGRAFICOS, SÓCIO-ECONÔMICOS E GEOLÓGICOS DA ÁREA DE ESTUDO

2.1 LOCALIZAÇÃO

O município de São José de Espinharas situa-se na região Oeste do Estado da Paraíba, Mesoregião Sertão Paraibano e Microregião Patos. Limita-se ao norte com os municípios de Paulista e Serra Negra do Norte (RN), a leste com São José do Sabugí (RN), Ipueira (RN) e São Mamede, a sul com Patos, e, a oeste, com Malta e Vista Serrana. Possui área de 732,80km² e insere-se nas folhas topográficas Pombal (SB.24-Z-A-VI) e Serra Negra do Norte (SB.24-Z-B-IV) editadas pelo MINTER/SUDENE nos anos de 1972 e 1982, respectivamente. A sede municipal situa-se a uma altitude de 210 metros, nas coordenadas 06°50'50" de latitude sul e 37°19'33" de longitude oeste (CPRM, 2005).

O acesso ao município, a partir de João Pessoa, é feito através da rodovia federal BR-230, em percurso de 345 Km até Patos, passando por Campina Grande, Soledade, Juazeirinho e Santa Luzia. A partir de Patos segue-se rumo norte através da estrada estadual PB-275, em trecho de 20 Km até chegar à cidade de São José de Espinharas, sede municipal (Figura 2.1).

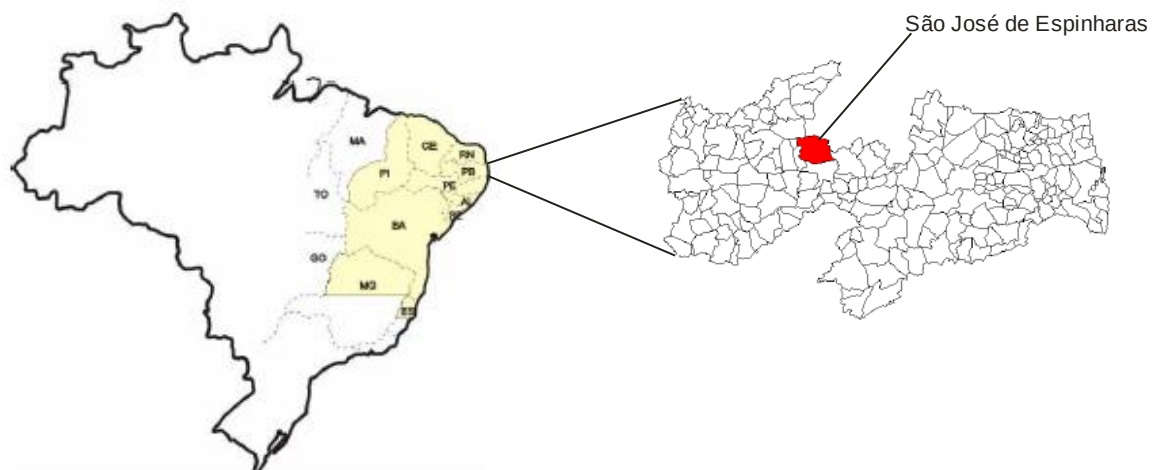


Figura 2.1: Mapa de localização do município de São José de Espinharas (PB).

2.2 RELEVO

O relevo da região é caracterizado pela extensa Depressão Sertaneja (Ross, 1990) que se estende por toda a região circundante ao município de Patos, incluindo São José de Espinharas. Esta superfície apresenta-se fortemente arrasada pelo intemperismo físico, destacando-se os *inselbergs* proeminentes na paisagem (Figura 2.2) (INCRA-PB, 2002). Na maior parte da sua área, o município de São José de Espinharas apresenta uma topografia caracterizada por relevo ondulado a suavemente ondulado, com declividade média à baixa. Entretanto, as áreas situadas na porção sudeste e extremo sul da área, apresentam um relevo ondulado a fortemente ondulado como nas serras de Carnaúba e do Olho d'Água onde ocorrem cotas de até 580 metros. A porção sudoeste da área também apresenta um relevo ondulado a fortemente ondulado, onde ocorrem as serras do Feijão, Macuna, Currais, Resende, Bonita, dos Trancos, dos Quintos, da Madeira e do Jardim, onde as cotas podem chegar a 600 metros (CPRM, 2005).



Figura 2.2: Aspectos dos *inselbergs* que se destacam na paisagem do município de São José de Espinharas (PB).

2.3 SOLOS

O solo na área do município de São José de Espinharas, é principalmente representado pelos tipos Regossolo Distrófico e Bruno Não-Cálcico, correspondentes na Nova Classificação do Sistema Brasileiro (1999), a Neossolo Regolítico distrófico e Luvisolo Crômico Órtico, respectivamente (EMBRAPA, 1972). Contudo, na área de estudo do presente trabalho foram encontrados os solos Neossolo Litólico e Neossolo Regolítico distrófico.

O Neossolo Litólico é um solo mineral pouco desenvolvido, raso, não hidromórfico, que predomina em áreas declivosas, onde ocorrem geralmente afloramentos rochosos. Por sua vez, o Neossolo Regolítico distrófico é um solo mineral pouco desenvolvido, raso a pouco profundo, não hidromórfico, contendo na fração areia e/ou cascalho, apreciáveis teores (>4%) de minerais facilmente intemperizáveis, principalmente feldspatos (Oliveira, 2005).

2.4 CLIMA

O município de São José de Espinharas situa-se no Polígono das Secas. Possui clima semi-árido quente, do tipo Bshw., segundo a classificação de Köppen, apresentando basicamente duas estações: chuvosa e seca (CPRM, 2005).

Segundo a divisão do Estado da Paraíba em regiões bioclimáticas, o município enquadra-se no bioclima 4aTh-Tropical quente de seca acentuada. A pluviometria média anual é de 884,7mm (Período 1962-1985), de distribuição irregular, onde 79% deste total concentra-se nos meses de fevereiro, março, abril e maio. Contudo, apresenta uma média mensal sempre inferior a 60mm. A temperatura média anual varia na ordem de 27°C a 35°C, sendo a máxima de 40°C e a mínima de 20°C (INCRA-PB, 2002).

2.5 VEGETAÇÃO

O tipo vegetacional encontrado na área corresponde à Caatinga (Figura 2.3), ecossistema típico da região semi-árida nordestina. É uma cobertura vegetal heterogênea constituída por espécies vegetais xerófitas, em geral decíduas, espinhosas, entremeadas com arbustos sobre tapete herbáceo estacional. Esta vegetação é representada basicamente por bromeliáceas e cactáceas, principalmente nas áreas rochosas, dentre as quais se destacam a macambira (*Bromelia laciniosa*), mandacaru (*Cereus sp.*), coroa de frade (*Melocactus bahiensis* Werdern) e facheiro (*Philosocereus sp.*). Também são encontradas muitas leguminosas com potencial econômico, tais como jurema preta (*Mimosa acutistipula* Benth), catingueira (*Caesalpinia pyramidalis* Tul.), angico (*Anadenanthera macrocarpa* (Benth.)). Além das espécies arbóreas de médio porte, tais como umbuzeiro (*Spondias tuberosa*), aroeira (*Myracrodruon urundeuva* Fr. All.), dentre outras que se desenvolvem, principalmente, ao longo dos rios e riachos, e ainda de palmeiras como a carnaúba (*Copernicia prunifera*) e catolé (*Syagrus cearensis* Nobleck), que ocorrem nos vales e baixadas onde o lençol freático é mais próximo da superfície (Santos & Anacleto, 1985; Dantas, 2002; INCRA-PB, 2002).



Figura 2.3: Aspecto da vegetação da Caatinga no município de São José de Espinharas (PB)

2.6 HIDROGRAFIA

O município de São José de Espinharas encontra-se inserido nos domínios da bacia hidrográfica do Rio Piranhas, sub-bacia do Rio Espinharas. Seus principais tributários são o Rio Espinharas e os riachos do Trapiá, dos Bois, Cauassú, da Caiçara, Sombrio, das Emas, Timbaúba, da Aguilhada, Pitombeira, do Tapuio, Cachoeira, Fundo, das Melancias, dos Louros, do Caluste, da Roça, do Cabrito, do Negro, Santa Rita, dos Ovos e Jatobá. A rede hidrográfica é constituída por riachos intermitentes, quase todos de pequeno porte que drenam diretamente para o Rio Espinharas, o qual atravessa toda a área estudada, sendo um dos principais afluentes do Rio Piranhas. Todos os cursos d' água superficiais têm regime de escoamento intermitente e o padrão de drenagem é basicamente dendrítico. Devido às condições pluviais de chuvas fortes na estação chuvosa aliadas à baixa permeabilidade dos solos, são gerados fluxos torrenciais com alta velocidade de escoamento em períodos curtos. Os principais corpos de acumulação são os açudes, que na área estudada são os principais: Novo, Sombrio, Flores e Maria Paes, além das lagoas Grande e Jerimum (Santos & Anacleto, 1985; INCRA-PB, 2002).

2.7 ASPECTOS SÓCIO-ECONÔMICOS

O município de São José do Espinharas foi criado pela lei número 2.687 de 20 de Dezembro de 1961 e foi instalado em 30 de Dezembro de 1961. Com área de 726 Km² possui uma população de 5.109 habitantes dos quais 1.475 (28,87%) residem na zona

urbana e 3.634 (71,13%) na zona rural. A densidade demográfica é de 7 habitantes/km². Do total da população, 2.700 são homens e 2.409 são mulheres (IBGE, 2000).

Com relação ao aspecto educacional, o município possui 18 estabelecimentos de ensino pré-escolar, 21 de ensino fundamental e 01 de ensino médio (Ministério da Educação/ INEP, 2006).

Os domicílios particulares e permanentes totalizam 1.147, e destes, 156 (13,6%) possuem esgotamento sanitário e 370 (32,25%) são atendidos pela rede geral de abastecimento de água (IBGE, 2000).

O sistema de saúde local possui 4 unidades ambulatoriais para atendimento da população e, dos 4 óbitos registrados, 01 ocorreu devido a doenças endócrinas, nutricionais e metabólicas; 01 devido a doenças do aparelho respiratório e 02 a doenças originadas no período perinatal (Ministério da Saúde / DATASUS, 2006).

No setor Primário, a agricultura representada pelo cultivo de algodão, feijão, milho e arroz, destaca-se como principal atividade de suporte econômico do município, participando na faixa de 75,1 a 100% da economia local. Outras atividades deste setor merecem destaque, tais como a pecuária (bovinos e ovinos) e a avicultura. O setor Secundário tem uma participação na economia do município entre 0 a 10% e o setor Terciário de 5 a 25% (IBGE, 2000).

A atividade mineral é pouco desenvolvida, relacionando-se apenas à exploração esporádica de mármore para calcinação. Garimpos de ouro e de minerais de pegmatitos são freqüentemente mencionados (Souza, 2004), porém nenhuma desta atividade está sendo desenvolvida.

2.8 GEOLOGIA

A região estudada está enquadrada na Província Borborema, que abrange uma superfície de aproximadamente 400.000 km², localizada no extremo nordeste da Plataforma Sul-Americana (Almeida *et al.*, 1977).

A área de estudo possui uma complexa litoestratigrafia, por se tratar de uma porção onde dá-se a colagem de terrenos tectonicamente distintos, além de ser uma região muito afetada pelas orogêneses Transamazônica e Brasileira, que mascaram estruturas e alteram o empilhamento litoestratigráfico original (CPRM, 2002).

A área estudada no entorno de São José de Espinharas possui embasamento constituído por rochas gnáissicas ortoderivadas paleoproterozóicas, notadamente bandadas,

refletindo provavelmente protólitos de granulação fina a média. Tal unidade diferencia-se em quatro tipos: (I) bandada leucocrática fina, (II) bandada mesocrática fina, (III) bandada mesocrática média a grossa e (IV) bandada mesocrática média extremamente milonitizada. Ocorrendo intrusivamente nas rochas citadas acima, tem-se uma suíte de rochas ortoderivadas, supostamente *tardi*-paleoproterozóica, de protólito grosso, que ocorre como uma série de rochas com textura *augen*, divididas em cinco tipos predominantes, contrastantes em relação à composição mineralógica e ao grau deformacional a qual foram submetidas. Com isso tem-se os seguintes tipos; (i) *augen*-gnaisses milonitizados; (ii) *augen*-gnaisses leucocráticos, médios a grossos; (iii) *augen*-gnaisses anfibolíticos, médios a grossos; (iv) *augen*-gnaisses anfibolíticos grossos a porfiríticos e (v) *augen*-gnaisses anfibolíticos albitizados, que podem potencialmente hospedar mineralizações de U-ETR. Representando as assembléias neoproterozóicas afloram diversos tipos de corpos intrusivos, caracterizados por relações *sin* a *tardi*-orogênicas. Como os primeiros representantes desta assembléia, ocorrem as rochas da suíte diorítica-granodiorítica, de caráter bimodal, que aflora nas porções central e ocidental da área, diferenciadas por sub-fácies que mostram rochas de composições monzograníticas, granodioríticas, monzoníticas, quartzo-dioríticas e dioríticas, tipicamente de *sin* a *tardi*-orogênicas. Mais restrita à fase *tardi*-tectônica, ocorrem as rochas intrusivas ácidas, geralmente dispostas na forma de diques e soleiras, discordantemente em relação às suas rochas encaixantes do embasamento, alojando-se ao longo de fraturas, representadas pelos diques epissieníticos e seus equivalentes metassomáticos mineralizados (albitizados); granitos cinza equigranulares, de composição microgranítica e diques pegmatíticos, normalmente acompanhados por veios de quartzo e diques aplíticos. Muito característico da área estudada, é a presença de lentes concordantes com a foliação das rochas do embasamento paleoproterozóico, compostas por rochas com composições anfibolíticas (localmente gnaisses anfibolíticos) e rochas cálcio-silicáticas. As rochas anfibolíticas ocorrem em praticamente toda a extensão da área, sempre encaixadas nos gnaisses ortoderivados do embasamento (tanto nos tipos bandados como nos *augens*). As rochas cálcio-silicáticas ocorrem em maior quantidade quando relacionadas aos *augen*-gnaisses, embora também possam ser encontradas dentro dos gnaisses bandados. Esta unidade de rochas cálcio-silicáticas foi subdividida em três tipos distintos, de acordo com suas associações minerais, mostrando um aparente controle composicional em relação às diferentes rochas encaixantes onde ocorrem (Souza, 2004).

Os corpos pegmatíticos afloram em praticamente toda a extensão da área, apresentam-se como corpos félsicos, formando uma rede de diques, soleiras e *sills*. Microscopicamente, são compostos essencialmente por quartzo (xenomórficos) e feldspato potássico (idiomórficos a hipidiomórficos), acompanhados por granadas (geralmente

idiomórficas) e micas variadas (principalmente biotita e micas brancas), como minerais acessórios. Os pegmatitos dispostos na forma de diques associam-se com os corpos de aplogranitos, ambos alojados aparentemente segundo contatos tectônicos, com as rochas encaixantes do embasamento. Quando ocorrem na forma de *sills*, geralmente em espessuras decimétricas, mostram-se mais grosseiros, homogêneos e com aparente deformação rúptil (Souza, 2004).

O mapa geológico da área estudada pode ser visualizado na Figura 2.4.

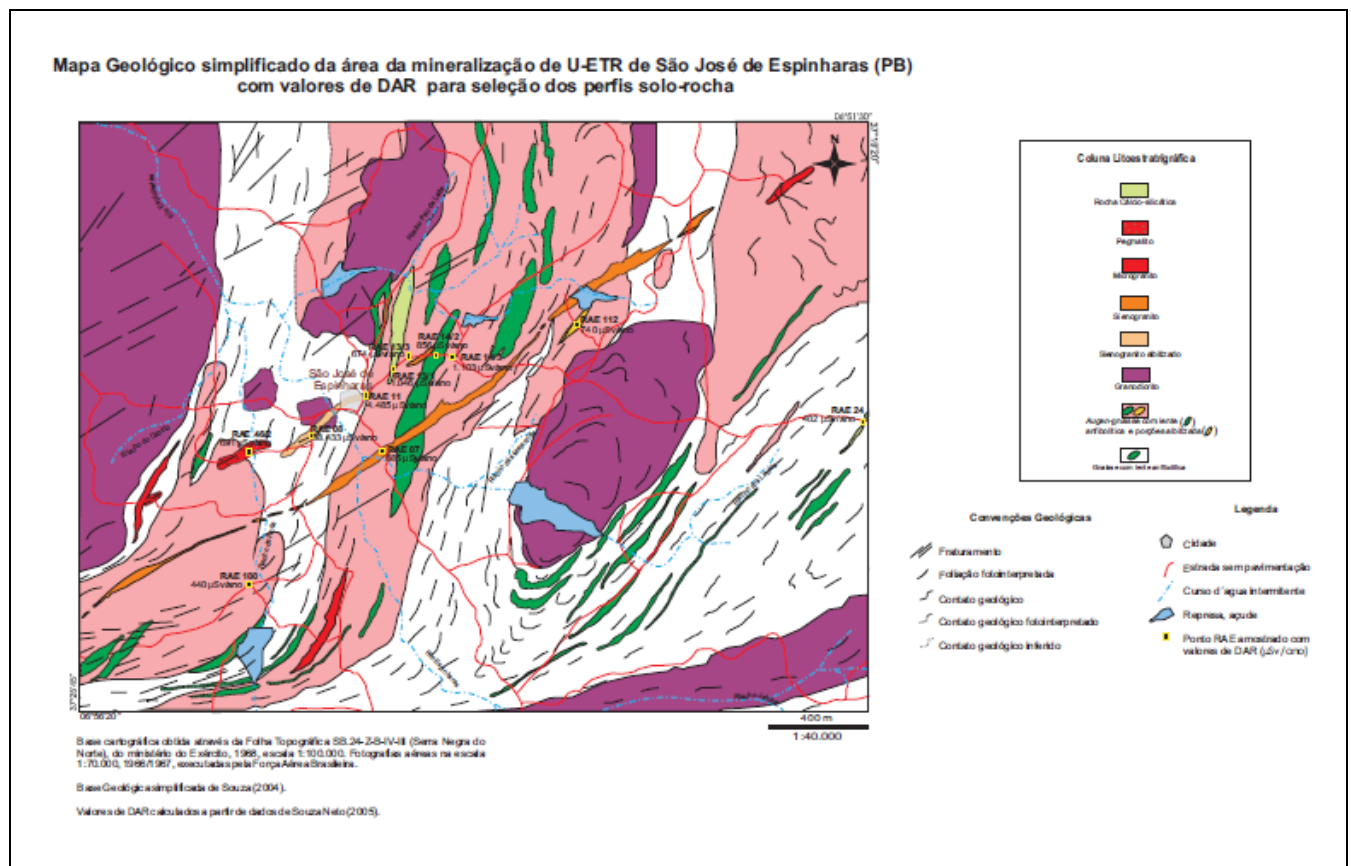


Figura 2.4: Mapa geológico da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas com valores de DAR calculados, (escala 1:40.000) (Simplificado de Souza (2004)).

CAPÍTULO III

MATERIAIS E MÉTODOS

Neste capítulo serão descritos os métodos utilizados na preparação dos trabalhos de campo (base cartográfica, seleção das estações de amostragem), aqueles utilizados na coleta de amostras de solo e rochas, além das análises laboratoriais subsequentes (análises granulométricas para determinação dos conteúdos percentuais de argila, silte e areia; teor de umidade, densidades global e das partículas, porosidade total do solo), análises químicas (matéria orgânica, carbonatos totais, pH), análises radiométricas (concentração e atividade específica dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn) e análises geoquímicas (concentração de Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb) nas amostras coletadas.

3.1 BASE CARTOGRÁFICA

O mapa utilizado como principal base cartográfica foi o mapa geológico da área da mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (escala 1:40.000) (Simplificado de Souza (2004)) (Figura 2.4). Também foram utilizados os seguintes mapas: aeroradiométrico (U, Th e K) aeromagnetométrico (DNPM/CNEN/ CPRM, 1973) (Figura 3.1) e o mapa de solos do município de São José de Espinharas (PB) (EMBRAPA, 1972) (Figura 2.2).

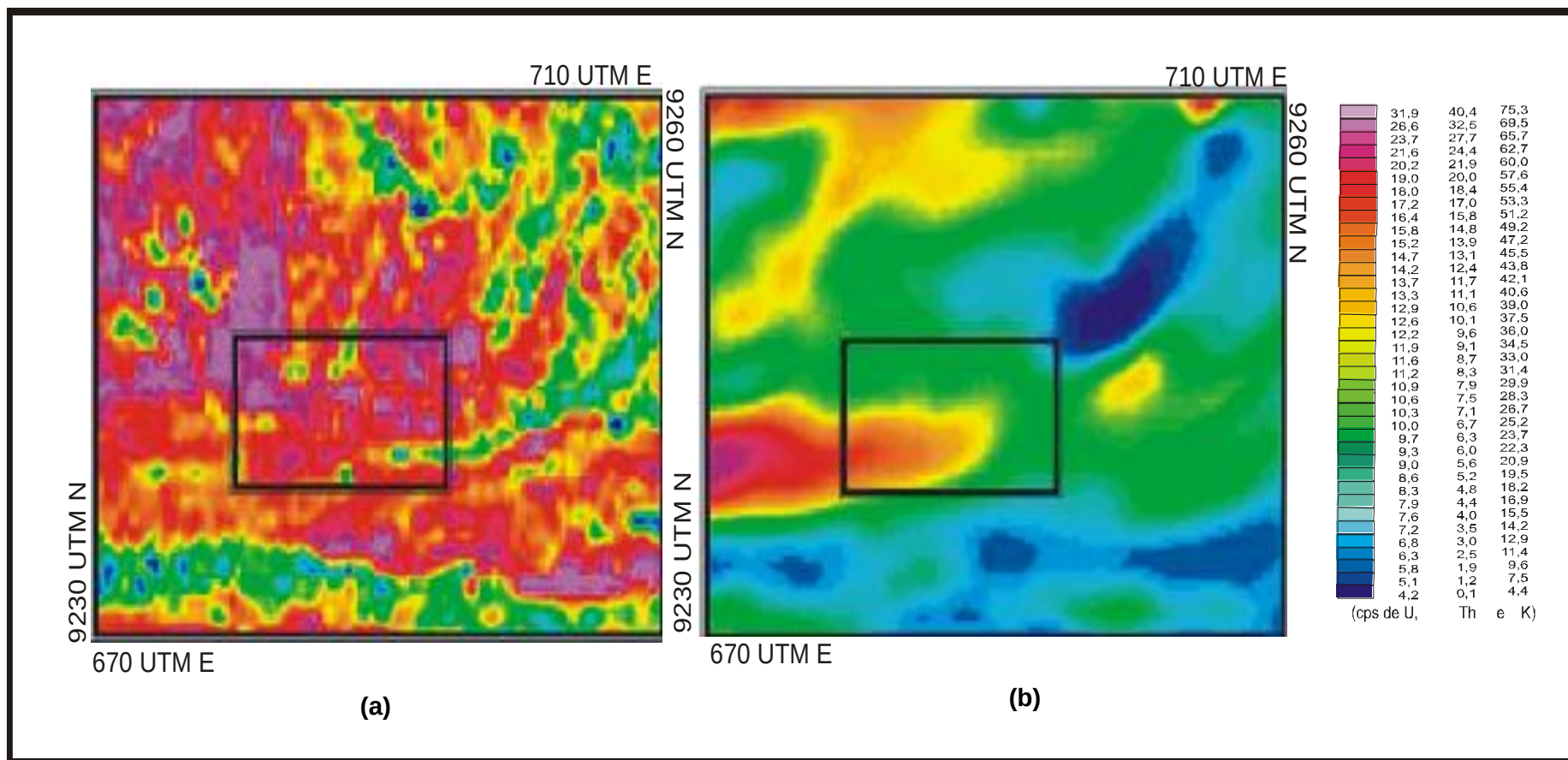


Figura 3.1: Mapas aeroradiométrico (a) e aeromagnetométrico (b) da área estudada (destacada pelo retângulo) e adjacências (Escala 1:250.000).
Modificado de DNPM/CNEN/CPRM, 1973).

3.2 SELEÇÃO DAS ESTAÇÕES DE AMOSTRAGEM (PERFIS ROCHA-SOLO)

Com base nos dados aerogeofísicos, mapas de anomalias radioativas naturais de U, Th e K, mapas geológico e de solos da área estudada e valores de dose anual de radiação natural emitida (a forma como esta foi calculada encontra-se detalhada no próximo parágrafo), foram escolhidas sete estações de amostragem, ou seja, sete perfis solo-rocha (CAE-01, CAE-02, CAE-03, CAE-04, CAE-05, CAE-06 e CAE-07) representativos das unidades geológicas, pedológicas e das anomalias radiométricas da área.

Os valores da DAR (dose anual de radiação natural) (Figura 3.1) emitida no local foram calculados a partir das concentrações de K, Th e U, obtidos com a análise geoquímica de 11 amostras de rocha representativas das litologias encontradas na área estudada (selecionadas a partir das amostras coletadas durante o mapeamento geológico (Souza, 2004)) (Tabela 3.1). Para o cálculo, utilizou-se a equação abaixo, proposta por Grasty *et al.*, (1984).

$$DAR = 320 + 52,56 \times [(K \times 1,505) + (U \times 0,625) + (Th \times 0,310)]$$

Onde: DAR é a dose anual de radiação ($\mu\text{Sv.ano}^{-1}$);

K = concentração de potássio na amostra (%);

U = concentração de urânio na amostra (ppm);

Th = concentração de tório na amostra (ppm).

Tabela 3.1. Dados geoquímicos de K, U e Th de amostras representativas da área do Depósito de São José de Espinharas (PB) e respectivos valores calculados da Dose Anual de Radiação (DAR) (Fonte: Souza Neto, 2004).

AMOSTRA (Localização em Souza Neto, 2004)	PERFIS SOLO-ROCHA (Figura 3.2, neste trabalho)	LITOLOGIA	K (%)	U (ppm)	Th (ppm)	DAR ($\mu\text{Sv/ano}$)
RAE 07	CAE-04	Sienogranito	1,97	2	9	685
RAE 08	CAE-01, 02 e 03	Sienogranito albitizado	0,02	808	710	38.433
RAE 11		Sienogranito albitizado	0,08	77	99	4.485
RAE 13/1		Cálcio-silicática	2,76	10	11	1.046
RAE 13/3		Gnaiss cálcio-silicático	0,05	6	10	674
RAE 14/2		Augen gnaiss cálcio-silicático	2,40	4	14	856
RAE 14/3		Quartzo monzonito	3,24	9	14	1.103
RAE 24		Cálcio-silicática	0,17	2	1	402
RAE 42/2		Gnaiss cálcio-silicático	1,76	3	8	691
RAE 100		Gnaiss cálcio-silicático	0,11	1	4	440
RAE 112		Augen gnaiss albitizado	2,05	2	12	740

Levando-se em consideração que o valor limite máximo para exposição humana recomendado pela IAEA-ICRP (1990) é de $1.000 \mu\text{Sv.ano}^{-1}$, correspondente ao valor de alerta para risco carcinogênico, as áreas que apresentaram valores de dose anual de radiação acima deste, serviram de base para a escolha das estações de amostragem na área estudada (Figura 3.2).

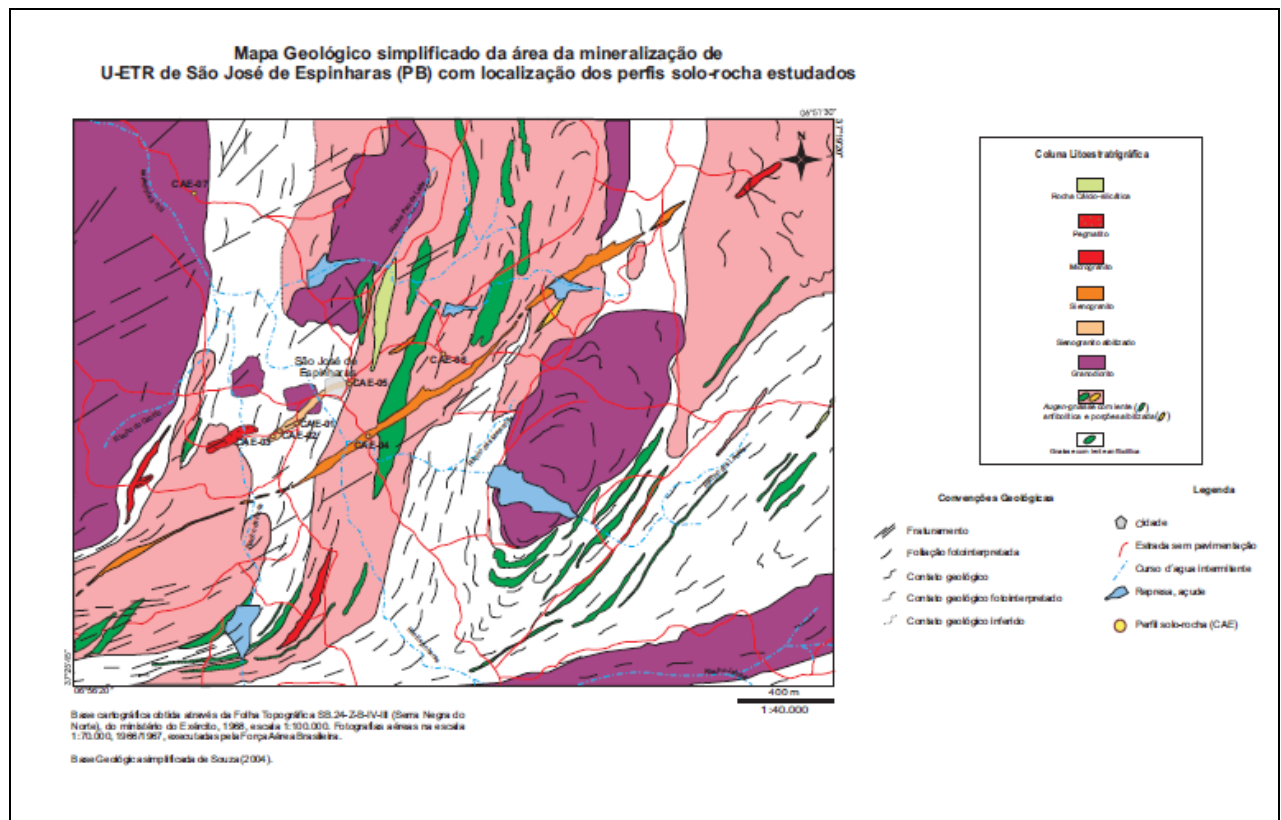


Figura 3.2: Mapa geológico da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (escala 1:40.000) com as estações de amostragem CAE (perfis solo-rocha). (Simplificado de Souza (2004)).

3.3 TRABALHOS DE CAMPO

3.3.1 Abertura dos perfis rocha-solo

De acordo com a escolha das estações de amostragem (CAE-01, CAE-02, CAE-03, CAE-04, CAE-05, CAE-06 e CAE-07) dentro da área investigada a partir dos critérios anteriormente mencionados, foram abertos os perfis solo-rocha. Cada um dos perfis solo-rocha foi georeferenciado no mapa e em escritório, a partir das coordenadas geográficas de cada um destes obtidas utilizando-se o GPS marca eTrex, datum “Córrego Alegre”. Posteriormente, ainda em campo, os perfis foram descritos morfologicamente conforme procedimento adotado pela Sociedade Brasileira de Ciência do Solo (EMBRAPA, 1999), sendo o atributo cor determinado através da comparação com as cores da *Munsell Soil Color Charts* (Munsell Color Company, 2000). Após a descrição das características morfológicas do solo, foi realizada a medida da atividade gama total (soma da atividade proveniente dos radionuclídeos U, T e K em cada um dos horizontes dos solos, e na rocha, através da técnica da Espectometria Gama *in situ* (Lauria *et al.*, 2003) com o auxílio de um cintilômetro portátil marca SAPHYMO SRAT SPP/2. No momento da leitura da atividade gama total, tomou-se o cuidado de estabelecer a distância de aproximadamente 5cm do ponto a ser medido, com o braço estendido no momento da operação, seguindo-se os procedimentos padrões sugeridos por Lauria *et al.* (2003).

3.3.2 Coleta de amostras

Foram realizadas duas campanhas de coletas de amostras em duas estações climáticas distintas (seca e chuvosa), a fim de se considerar o efeito sazonal nos parâmetros analisados no presente estudo, qual seja: estação seca, época de máxima concentração das substâncias químicas no solo, e estação chuvosa, onde tais concentrações são as mais diluídas possíveis. Desta forma, para a escolha do mês adequado às coletas, foram observadas as taxas de precipitação pluviométrica mensais ocorridas na área de estudo no período compreendido entre janeiro de 2000 e dezembro de 2007 (Figura 3.3), para efeito de se ter uma significativa representatividade do comportamento da precipitação pluviométrica anual.

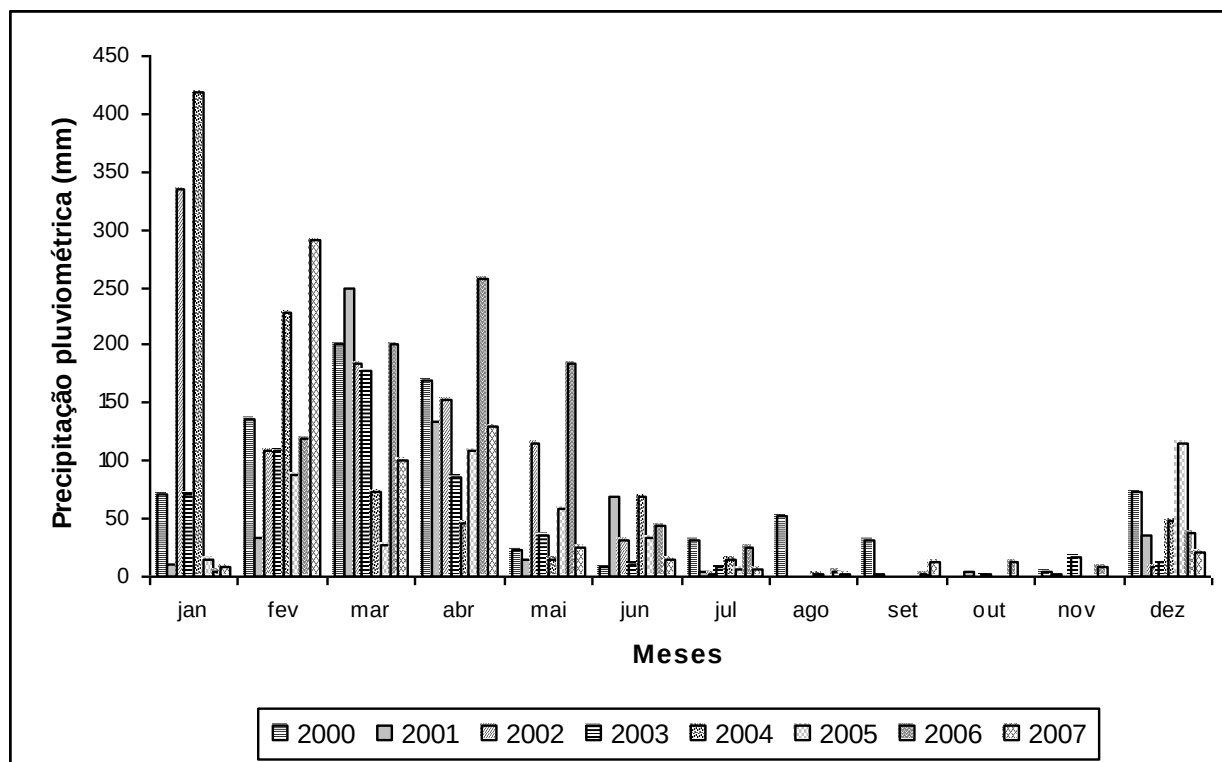


Figura 3.3 Taxas de precipitação pluviométrica mensal acumulada em São José de Espinharas (PB) no período 2000 a 2007 (Fonte: CPTEC/INPE, 2007).

A primeira coleta ocorreu no período seco, no mês de Fevereiro de 2007 (07-11/02/2007) (Figura 3.4), e a segunda coleta ocorreu imediatamente após o período chuvoso, em Julho de 2007(25-27/07/52007) (Figura 3.5).

Nos sete perfis solo-rocha foram coletadas vinte e uma amostras de solos e sete amostras de rochas em cada uma das campanhas de coleta. A coleta foi feita com uso de utensílios plásticos e de acordo com as orientações da EMBRAPA (1999) e de Lauria *et al.* (2003). As amostras coletadas foram acondicionadas em sacos plásticos, devidamente identificadas e levadas para análises laboratoriais.

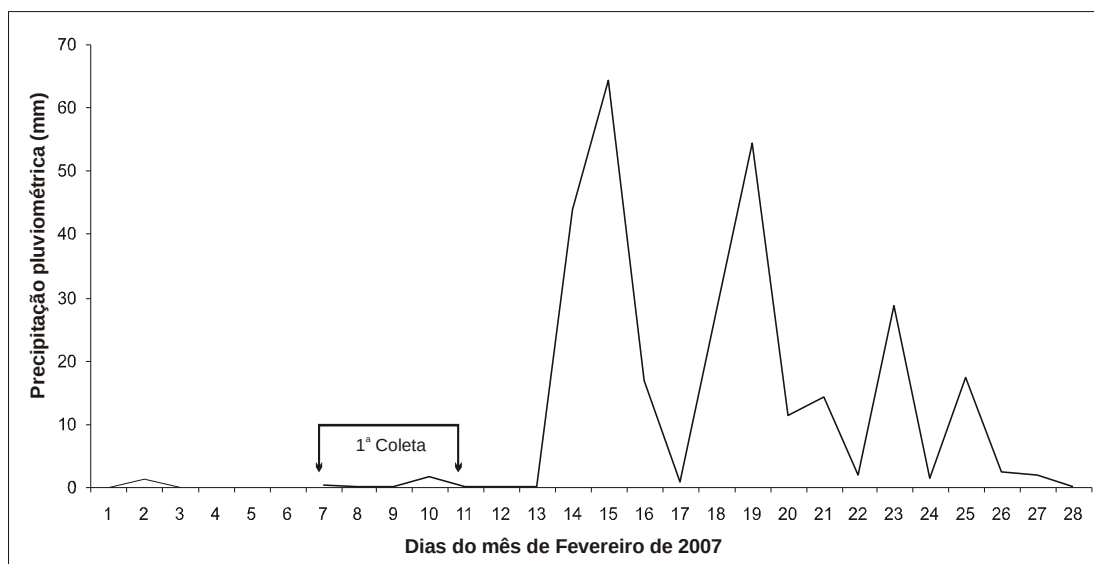


Figura 3.4: Taxa de precipitação pluviométrica diária em São José de Espinharas (PB) no mês de fevereiro de 2007 (Fonte: CPTEC/INPE, 2007).

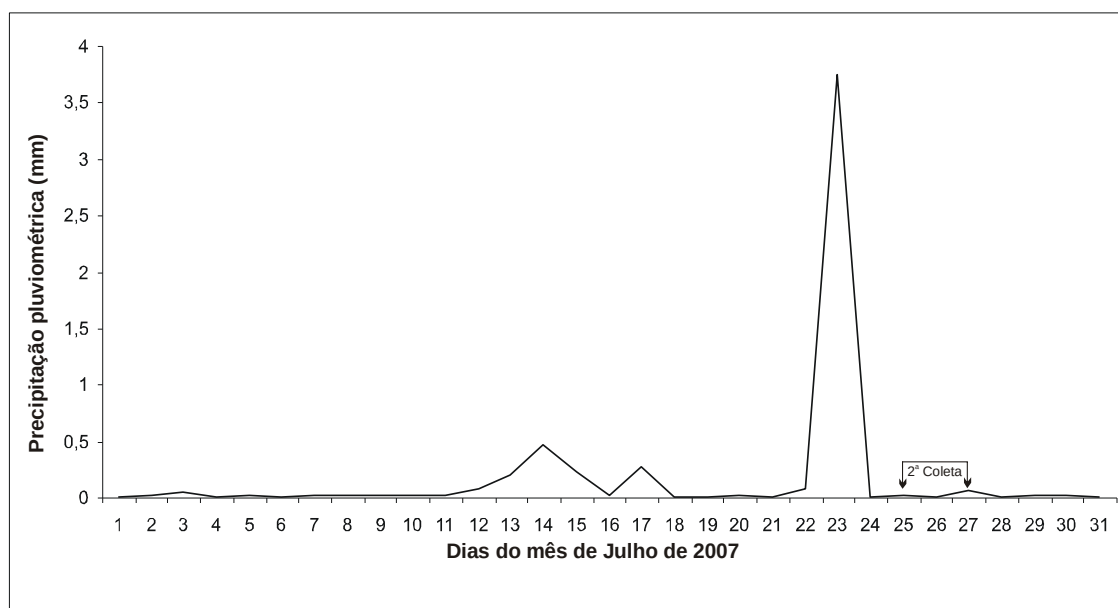


Figura 3.5: Taxa de precipitação pluviométrica diária em São José de Espinharas (PB) no mês de julho de 2007 (Fonte: CPTEC/INPE, 2007).

3.4 TRABALHOS DE LABORATÓRIO

A preparação das amostras foi feita no Laboratório de Geoquímica (Departamento de Geologia da Universidade Federal de Pernambuco (Recife-PE)). As análises físicas (análises granulométricas para determinação dos conteúdos percentuais de argila, silte e areia; teor de umidade, densidades global e das partículas) foram realizadas no Laboratório de Análises Físicas de Solo (Centro de Pesquisa de Solos da Universidade Federal Rural de Pernambuco (Recife-PE)) e análises químicas (matéria orgânica, carbonatos totais, pH), análises radiométricas (concentração e atividade específica dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn) e análises geoquímicas (concentração de Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb) foram realizadas nos Laboratórios da Divisão de Análises Ambientais (DIAMB) do Centro Regional de Ciências Nucleares (CRCN/CNEN) (Recife-PE).

3.4.1 Preparação das amostras

No laboratório, as amostras de solo foram colocadas para secar à temperatura ambiente por 6 dias (Lauria *et al.*, 2003). Em seguida, foram destorroadas manualmente com auxílio de um martelo de borracha dentro de bacia plástica e, posteriormente passadas em peneiras plásticas com abertura de 2 mm para obtenção da TFSA (terra fina seca ao ar). Uma parte de cada amostra de solo também foi passada em peneiras plásticas com abertura de 63 μm para obtenção do material fino (silte + argila). Na fração mais grossa (< 2mm) foram realizadas as análises físicas (análises granulométricas, teor de umidade, densidades global e das partículas) e químicas (matéria orgânica, carbonatos totais, pH), e radiométricas (concentração e atividade específica dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn) no HPGe (detector de germânio hiperpuro) e na fração mais fina (< 63 μm) foram realizadas as análises geoquímicas (concentração de Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb).

Uma parte representativa de cada amostra de rocha foi reduzida à fração granulométrica < 2mm, com auxílio de martelo de borracha, para realização das análises radiométricas no HPGe (Lauria *et al.*, 2003). Outra parte representativa de cada amostra de rocha, ou uma alíquota de cada amostra, foi pulverizada em cadinho de porcelana até obtenção de um material com granulometria fina (< 80 μm) para realização das análises geoquímicas (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb).

3.4.2 Análises físicas e químicas

As análises físicas do solo (análises granulométricas para determinação dos conteúdos percentuais de argila, silte e areia, teor de umidade, densidades global e das partículas, e cálculo da percentagem da porosidade total do solo) foram realizadas conforme metodologia da EMBRAPA (1979).

As análises químicas dos solos (matéria orgânica, carbonatos totais, pH) e das rochas (matéria orgânica, carbonatos totais) foram efetuadas conforme metodologias específicas. A determinação das concentrações de matéria orgânica e carbonatos totais pelo método da perda ao fogo a 360 e 1.050°C, respectivamente (Kralik,1999) e a determinação do pH em água conforme EMBRAPA (1979).

3.4.2.1 Descrição dos métodos utilizados para as análises físicas

Todas as análises físicas realizadas nas amostras de solos utilizaram os métodos preconizados pela EMBRAPA (1979).

3.4.2.1.1 Análise granulométrica (Método da Pipeta)

- ✓ Objetivo: determinação da distribuição percentual das partículas primárias do solo.
- ✓ Princípio: desagregação mecânica da amostra, dispersão e avaliação da proporção relativa das partículas primárias por sedimentação em meio aquoso.
- ✓ Aparelhagem: agitador rotatório de Wiegner e balança analítica.
- ✓ Reagentes e soluções:
 - a. Solução dispersante: dissolver 20g de hidróxido de sódio em 5 litros de água destilada e adicionar 50g de hexametáfosfato de sódio, agitando com agitador magnético até completa dissolução do reagente;
 - b. Água oxigenada a 30% (apenas quando o solo conter mais de 5% de matéria orgânica);
 - c. Solução de pirofosfato de sódio 0,1M.

✓ Procedimento

O procedimento consiste em transferir, para uma garrafa de Stohmann, 10g da TFSA, mais 50mL de solução dispersante e utilizar o método da pipeta (ver 3.4.2.1.2.1.1). Utilizar agitador rotatório de Wiegner a 30rpm, durante dezesseis horas. Transferir a suspensão para uma proveta calibrada de 500mL (5cm de diâmetro) e utilizar o método da pipeta.

✓ Cálculos

Os resultados são expressos em porcentagem da TFSA. Das alíquotas pesadas, subtrair o peso do dispersante que, no caso descrito, corresponde à cerca de 0,014g.

Calcula-se o percentual das frações granulométricas através das seguintes expressões:

argila (%) na TFSA = $[\text{peso da argila} + \text{dispersante (A + D)} - \text{peso do dispersante (D)}] \times 500$

silte (%) na TFSA = $[\text{peso da silte} + \text{argila} + \text{dispersante (A + S + D)} - \text{peso da argila (A)} - \text{peso do dispersante (D)}] \times 500$.

areia grossa (%) na TFSA = $\text{peso da areia grossa (AG)} \times 10$;

areia fina (%) na TFSA = $100 - (\% \text{argila} + \% \text{silte} + \% \text{areia grossa})$.

Tabela 3.2: Tempo necessário, a diferentes temperaturas, para sedimentação de partículas de solo com peso específico de 2,65 g/cm³. (*Para a argila (d < 0,002mm), considerou-se uma profundidade de 5cm e para argila⁽¹⁾ + silte (d<0,02mm), a profundidade de 10cm⁽¹⁾)

Temperatura (°C)	Argila (5cm)		Argila + silte (10cm)	
	hora	minuto	minuto	segundo
10	5	13	6	14
11	5	05	6	03
12	4	55	5	54
13	4	48	5	44
14	4	40	5	35
15	4	33	5	27
16	4	25	5	10
17	4	18	5	10
18	4	13	5	03
19	4	05	4	55
20	4	00	4	48
21	3	55	4	41
22	3	50	4	34
23	3	43	4	28
24	3	38	4	22
25	3	33	4	15
26	3	28	4	10
27	3	23	4	04
28	3	20	3	59
29	3	15	3	54

¹Equação de Stokes :

$$V = \frac{2}{9} \cdot g \cdot r^2 \cdot (D_p - D_{\text{solução}}) / \eta$$

Onde:

$g = 980,7 \text{ cm/s}^2$; r = raio da partícula; D_p = peso específico de partícula (no caso = $2,65/\text{cm}^3$); $D_{\text{solução}}$ = peso específico da solução e η = viscosidade da água à temperatura considerada.

De acordo com as porcentagens de areia, silte e argila, os solos são agrupados em classes texturais, que encontram-se dispostas no triângulo textural (Figura 3.8) recomendado pela Sociedade Brasileira de Ciência do Solo.



Figura 3.6: Triângulo para classificação textural do solo (Fonte: EMBRAPA, 1999)

3.4.2.1.2 Densidade das Partículas (Método do Balão Volumétrico)

- ✓ Princípio: determinação da massa da unidade de volume das partículas primárias do solo.
- ✓ Reagentes e soluções: álcool etílico 96°GL.
- ✓ Procedimento
 - Pesar 20g de TFSA seca em estufa a 105°C.
 - Transferir para balão volumétrico aferido de 50mL.

- Colocar 25mL de álcool etílico e agitar delicadamente.
 - Deixar em repouso até o dia seguinte.
 - Com auxílio de bureta, completar o volume do balão com álcool etílico, vagarosamente, a fim de eliminar bolhas.
 - Anotar o volume de álcool gasto e calcular o valor da densidade das partículas.
 - ✓ Cálculo
- O valor da densidade das partículas é obtido através da expressão abaixo e expresso em g/cm³.

$$\text{Densidade das partículas (g/cm}^3\text{)} = \frac{\text{Peso da amostra seca}}{50 - \text{Volume de álcool gasto}}$$

3.4.2.1.3 Densidade Global (Método do Anel Volumétrico)

- ✓ Princípio: determinação do peso da unidade de volume do solo, incluindo seu espaço poroso.
- ✓ Aparelhagem: anel volumétrico de 50mL ou 50cm³ (podem ser usados outros volumes), recipientes de alumínio.
- ✓ Procedimento
 - Determinar ou anotar o volume de um anel ou cilindro de alumínio que contém a amostra.
 - Pesar o conjunto e anotar o peso.
 - Transferir a amostra para recipiente de alumínio, previamente tarada.
 - Colocar para secar em estufa a 105°C por 24-48 horas e pesar.
 - Calcular o valor da densidade global.

✓ Cálculo

Com o volume do anel ($V = \pi r^2 h$), é feito o cálculo para determinação da densidade global (g/cm³), conforme a expressão abaixo.

$$\text{Densidade global (g/cm}^3\text{)} = \frac{\text{Peso da amostra seca}}{\text{Volume (50 cm}^3\text{)}}$$

3.4.2.1.4 Porosidade Total

A porosidade total (Pt) percentual da amostra de solo pode ser avaliada a partir dos dados de densidade das partículas e da densidade global, mediante a seguinte relação:

$$\text{Porosidade total (\%)} = \left(1 - \frac{\text{Densidade global}}{\text{Densidade das partículas}} \right) \times 100$$

3.4.2.1.5 Teor de Umidade (umidade atual)

- ✓ Princípio: determinação do conteúdo de umidade do solo.
- ✓ Aparelhagem: recipientes de alumínio.
- ✓ Procedimento
 - Pesar 1g da TFSA em recipiente de alumínio ou cadinho previamente tarado.
 - Colocar para secar em estufa a 105-110°C por 24 horas.
 - Deixar secar em dessecador e pesar.
 - Repetir a operação até peso constante da amostra.
 - Calcular o valor da umidade atual da amostra.
- ✓ Cálculo: calcular o teor de umidade da amostra (%) através da seguinte expressão:

$$U (\%) = \frac{(\text{peso da amostra úmida} - \text{peso da amostra seca})}{\text{peso da amostra seca}} \times 100$$

3.4.2.1.6 Difratometria de Raios-X

A mineralogia das frações finas foi determinada por difratometria de raios-X (DRX), com obtenção dos difratogramas de raios-X, através do difratômetro Siemens D5000 (Laboratório de Materiais Avançados, do Departamento de Física da Universidade Federal de Pernambuco) operando a uma tensão de 40Kv, com corrente de 20mA e velocidade de registro de 10mm.min⁻¹. Sendo a identificação e interpretação dos minerais presentes nos difratogramas feita por meio do espaçamento interplanar, forma, largura e intensidade dos picos, segundo metodologias descritas por Grim (1968), Jackson (1975), Dixon (1977), Whittig & Allardice (1976) e Moore & Reynolds (1989).

3.4.2.2 Descrição dos métodos utilizados para as análises químicas

3.4.2.2.1 pH em água

- ✓ Objetivo: determinação potenciométrica do pH do solo em água.
- ✓ Princípio: medida da variação do potencial em um eletrodo de vidro com a variação da atividade hidrogeniônica da solução em que ele está mergulhado, usando um eletrodo de referência.
- ✓ Aparelhagem: medidor de pH provido de um eletrodo de vidro e um de referência ou um eletrodo combinado e um agitador mecânico.
- ✓ Reagentes e soluções:
 - a. Soluções-tampão para pH = 4,0 e pH = 7,0
 - b. Água destilada
- ✓ Procedimento:
 - Transferir 10g de TFSA para becker com capacidade de 50 mL.
 - Adicionar 25mL de água destilada e agitar mecanicamente durante quinze minutos.
 - Esperar, no mínimo, trinta minutos e proceder à leitura. O eletrodo de vidro, ou a parte a ele correspondente em um eletrodo combinado, deve tocar o sedimento, enquanto o de referência, ou sua parte no combinado, deve ficar no líquido sobrenadante. O pH deve ser lido sem agitação, depois de atingido o equilíbrio (30 minutos).
 - Antes das mensurações, o medidor de pH deve ser calibrado com as soluções-tampão para pH 4,0 e 7,0. A cada quinze e vinte leituras, o peagâmetro deve ser calibrado novamente com uma das soluções-tampão.
 - Lavar o eletrodo entre uma e outra determinação com água destilada por meio de uma pisseta e enxugar cuidadosamente com papel absorvente.

3.4.2.2.2 Matéria Orgânica (Método da Combustão por via Seca)

O método utilizado para determinação da matéria orgânica nas amostras de solo e rocha utilizado foi o da combustão por via seca (Kralik, 1999).

- ✓ Aparelhagem: mufla, dessecador, cadinhos de porcelana e balança analítica.
- ✓ Procedimento
 - Colocar a mesma amostra de TSFA seca em estufa a 105-110°C (que foi utilizada para determinação da umidade) em mufla a 360°C, por 2 horas.

-Pesar em seguida e calcular a percentagem de matéria orgânica da amostra através da expressão:

$$\% \text{ Matéria orgânica} = \frac{\text{peso amostra seca a } 105-110^{\circ}\text{C} - \text{peso amostra seca a } 360^{\circ}\text{C}}{\text{peso da amostra seca a } 360^{\circ}\text{C}} \times 100$$

3.4.2.2.3 Carbonatos Totais (Método da Combustão por via Seca)

- ✓ Aparelhagem: mufla, dessecador, cadinhos de porcelana e balança analítica.
- ✓ Procedimento
 - Colocar a mesma amostra de TSFA seca em mufla a 360°C (que foi utilizada para determinação da matéria orgânica) colocar para secar em mufla a 1.050°C, por 1 hora.
 - Pesar em seguida e calcular a percentagem de carbonatos totais da amostra através da expressão:

$$\% \text{ Carbonatos Totais} = \frac{\text{peso amostra seca a } 360^{\circ}\text{C} - \text{peso amostra seca a } 1.050^{\circ}\text{C}}{\text{peso da amostra seca a } 1.050^{\circ}\text{C}} \times 100$$

3.4.3 Análises geoquímicas

As análises geoquímicas para determinação dos elementos Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb, no perfil rocha-solo, foram realizadas através de digestão parcial das amostras e posterior leitura por Espectrometria de Absorção Atômica no Laboratório da Divisão de Meio Ambiente (DIAMB) do CRCN/CNEN.

3.4.3.1 Digestão das amostras

A metodologia utilizada para digestão parcial (Sutherland, 2002) das amostras de solo e rocha permite que sejam conhecidas as concentrações consideradas como biodisponíveis dos elementos analisados.

Neste caso, para a determinação dos elementos Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb, pesou-se 0,5g da amostra (rocha moída < 0,1mm e solo < 63µm) homogeneizada,

adicionou-se 10mL de HCl 0,5M e deixou-se por 1 hora em agitador mecânico. Em seguida, filtrou-se a mistura, completando o volume da solução para 100mL e realizou-se a leitura das concentrações dos elementos com auxílio do Espectrômetro de Absorção Atômica para elementos químicos Al, Fe e Mn, e com o Forno de Grafite como acessório acoplado a este aparelho para os elementos Cd, Co, Cu, Ni e Pb.

Utilizou-se como padrão de referência uma amostra do "IAEA-Soil 7: *trace elements in soil*" certificado pela Agência Internacional de Energia Atômica (IAEA).

3.4.4 Análises Radiométricas

Para a realização das análises radiométricas dos solos e rochas, foi utilizado o método da espectrometria gama com detectores de germânio hiperpuros (HPGe), também chamados de detectores de germânio intrínsecos. Este método permite a identificação de fontes potenciais de contaminação radioativa ambiental, seja de origem natural ou artificial (Sujo *et al.*, 2004). Além disso, é um método que possui boa precisão para análise de radionuclídeos naturais em amostras ambientais (Ghiassi-Nejad *et al.*, 2001; Ródenas *et al.*, 2003; Malanca *et al.*, 2004; Sujo *et al.*, 2004). É um método prático, não destrutivo, de baixo custo e rápido para determinação das concentrações dos radionuclídeos de interesse (Santos Júnior, 2005).

3.4.4.1 Determinação da atividade dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn em solos e rochas

A metodologia empregada para determinação da concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn e respectivas atividades em solo e rocha foi a espectrometria gama e seguiu as orientações de Kannan *et al.* (2002).

- ✓ Princípio: as propriedades dos produtos resultantes da interação da radiação com a matéria permitem não apenas identificar, como também quantificar a radiação incidente. O sistema de detecção das radiações nucleares e a determinação qualitativa e quantitativa dos radionuclídeos baseiam-se nas ionizações e excitações produzidas nos gases, líquidos e sólidos integrantes dos detectores. Assim, o pulso eletrônico ou o quantum de luz que se produz em um detector pela radiação, serão avaliados e registrados em equipamentos apropriados para contagem (Lauria *et al.*, 2003).

- ✓ Sistema de detecção gama: o sistema de medidas é composto por um detector de germânio hiperpuro (HPGe) de 4,54cm de diâmetro e volume ativo de 41,1cm³ (o volume ativo do detector se refere à região de depleção onde as cargas formadas pela interação com a radiação são rápidas e eficientemente coletadas pelo detector). O equipamento apresenta uma resolução de 1,77 keV em 1.332 ou keV para o ⁶⁰Co, eficiência intrínseca de 27% e está acoplado a um MCA (*multichannel analyser*) Canberra com 8.192 canais e ao *software* Genie-2000 Camberra. O analisador multicanal permite a transformação dos pulsos lineares em sinais digitais, realizando o processamento de separação por intervalos de energia. O resultado é apresentado no monitor do computador na forma de um gráfico que correlaciona o número de contagens e a amplitude de pulso (energia). O *software* permite o processamento e a manipulação do espectro. Para reduzir os efeitos da radiação de fundo, o detector está envolvido por uma blindagem de chumbo de aproximadamente 6,5cm de espessura e uma superfície interna delgada constituída de latão. O sistema possui os seguintes dispositivos: fonte de tensão, pré-amplificador, amplificador linear, contador, analisador multicanal e computador. Tais componentes permitem determinar, simultaneamente, os radionuclídeos presentes nas amostras e suas respectivas atividades (Santos Júnior, 2005).
- ✓ Procedimento: para as análises por espectrometria gama, as amostras devem ser homogenizadas para obtenção de uma distribuição uniforme dos seus componentes (Kannan *et al.*, 2002). Em seguida, devem ser estabelecidas as massas, tempo de contagem e geometria dos recipientes de polietileno para uso no detector de germânio.

Para cada amostra de solo e rocha, estabeleceu-se que a massa seria de 50g e granulometria <2mm. Estas amostras foram acondicionadas em recipientes cilíndricos de polietileno com capacidade volumétrica de aproximadamente 150cm³. Estes recipientes, com a mesma geometria do recipiente utilizado para calibração da eficiência (Kannan *et al.*, 2002), contendo as amostras, foram hermeticamente fechados e guardados por um período de 30 dias a fim de permitir o equilíbrio radioativo secular entre ²²⁶Ra, ²¹⁴Pb e ²¹⁴Bi (Papp, 1997; Kanan *et al.*, 2002). Após este período as amostras foram levadas para o HPGe pelo tempo de contagem do detector de 28.800 segundos (8 horas) para obtenção dos gráficos dos fotopicos gama entre as energias de 59,5 keV e 1.408keV.

✓ Cálculos:

- Para determinar a atividade do ^{238}U nas amostras, foram utilizados os fotopicos gama do ^{234}Th , na energia de 93 keV;
- Para determinar a atividade do ^{232}Th nas amostras, foram utilizados os fotopicos gama do ^{228}Ra na energia de 911 keV;
- Para determinar a atividade do ^{40}K nas amostras, foram utilizados os fotopicos gama do ^{40}Ar na energia de 1.460 keV;
- Para determinar a atividade do ^{226}Ra e ^{228}Ra nas amostras, foram utilizados os fotopicos gama do ^{214}Bi e ^{228}Ac , nas energias de 609 keV e 911 keV, respectivamente;
- Para determinar a atividade do ^{222}Rn nas amostras, foram utilizados os fotopicos gama do ^{226}Ra na energia de 609 keV.

O método de medida é absoluto. Tem como parâmetro básico a aplicação da equação abaixo e utiliza três padrões (^{152}Eu , ^{241}Am e ^{133}Ba), através dos quais é possível determinar as eficiências de contagens para as energias entre 59,5 keV e 1.408 keV, bastando apenas obedecer às mesmas condições de contagem para todas as medidas efetuadas.

A equação para determinação da atividade específica do radionuclídeo considerado ($\text{Bq} \cdot \text{Kg}^{-1}$) é a seguinte:

$$A = \frac{C}{\varepsilon \cdot t \cdot I_\gamma \cdot M}$$

Onde: **A** é a atividade específica do radionuclídeo em consideração ($\text{Bq} \cdot \text{Kg}^{-1}$); **C** é a área total do pico do radionuclídeo (contagem) determinada experimentalmente; ε é a eficiência de contagem para a energia específica considerada; **t** é o tempo de contagem (s); I_γ é a probabilidade de emissão de fótons do radionuclídeo específico e **M** é a massa da amostra em quilograma (Kg).

- ✓ Eficiência de contagem: para a determinação da eficiência de contagem, foram utilizados três padrões líquidos para dopar o padrão: o volume de 10mL de ^{152}Eu , que apresenta meia-vida física de aproximadamente 13,5 anos, com atividade de $38,533 \text{ Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$ (em 11/03/2004), o volume de 5mL de ^{241}Am , que apresenta meia-vida física de aproximadamente 432,7 anos e atividade de $28,85 \text{ Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$ (em 13/03/2007), e o volume de 5mL de ^{133}Ba , com meia-vida física de 10,5 anos e atividade de $39,13 \text{ Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$ (em 10/04/2007) (Erdtmann & SoyKa, 1979). As atividades dos padrões acima citados foram calculadas através da equação abaixo, considerando-se como referência a atividade inicial de $46,729 \text{ Bq} \cdot \text{mL}^{-1}$ certificada pelo IRD (Instituto de Radioproteção e Dosimetria).

✓ Equação:

$$A = A_0 \times e^{-\lambda \cdot t}$$

Onde: **A** é a atividade que se deseja calcular, com base na atividade inicial **A₀**, e na constante de decaimento radioativo λ ($\lambda = \ln 2 \cdot t_{1/2}^{-1}$).

3.4.4.2 Determinação das concentrações de ²³⁸U, ²³²Th, ⁴⁰K, ²²⁶Ra e ²²²Rn em solos e rochas

A partir dos valores das atividades específicas (Bq.Kg⁻¹) dos radionuclídeos ²³⁸U, ²³²Th, ⁴⁰K, ²²⁶Ra e ²²²Rn, podem ser calculadas as concentrações (ppm) destes radionuclídeos.

O cálculo é feito considerando-se que (IAEA, 1997):

- ✓ 1% de ⁴⁰K equivale a 313 Bq.Kg⁻¹ de ⁴⁰K;
- ✓ 1ppm de ²³⁸U equivale a 12,35 Bq.Kg⁻¹ de ²³⁸U ou de ²²⁶Ra;
- ✓ 1ppm de ²³²Th equivale a 4,06 Bq.Kg⁻¹ de ²³²Th.

3.5 INTERPRETAÇÃO DOS RESULTADOS

Todos os resultados obtidos foram discutidos e interpretados com base na literatura disponível e feitas correlações entre todos os parâmetros físico-químicos, geoquímicos e radiométricos estudados, através de uma matriz de correlação de Pearson. Neste tratamento estatístico, para os valores abaixo do limite de detecção considerou-se a metade deste limite, e como correlação significativa positiva ou negativa, valores dos coeficientes de correlação de Pearson (r^2) superiores a 0,8 (valor absoluto), tanto positivo quanto negativo.

No estudo da mobilidade dos metais pesados (Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb) e dos radionuclídeos (²³⁸U, ²³²Th, ⁴⁰K, ²²⁶Ra e ²²²Rn) nos perfis rocha-solo estudados, foram construídos diagramas ISOCON (Grant, 1986). Neste método gráfico define-se um elemento químico considerado imóvel durante o processo de transformação de um determinado material original em um produto de alteração, e avaliando-se em relação a este os demais elementos químicos quanto à mobilidade relativa. Dessa forma, os diagramas ISOCON consistem em uma relação entre as concentrações dos elementos químicos no material

original (rocha, por exemplo), e as concentrações dos elementos no produto da alteração deste material (solo, por exemplo). A análise é feita a partir do traçado e comparação entre duas retas: uma que passa pela origem das coordenadas no diagrama binário e une os pontos que possuem cada um as mesmas concentrações do determinado elemento químico no material original e no material alterado, e que tem portanto inclinação de 45° no gráfico; e outra reta, que passa na origem das coordenadas e no ponto equivalente às concentrações do elemento considerado relativamente mais imóvel (Ti ou Al, por exemplo), e que é denominada de ISOCON. Esta comparação permite verificar as perdas ou ganhos relativos a cada elemento químico durante o processo de alteração do material original (rocha alterando para solo, por exemplo).

No presente estudo, foram construídos diagramas ISOCON, considerando-se os aspectos sazonais (estações seca e chuvosa anual), para avaliar duas condições dos perfis solo-rocha. Na estação seca os diagramas ISOCON permitiram verificar o “status” do solo com relação ao conteúdo dos elementos resultantes dos processos intempéricos e pedogenéticos. Na estação chuvosa, os diagramas permitiram avaliar a mobilidade dos elementos e radionuclídeos no perfil do solo formado devido aos processos de influenciam no ganho ou perda em radionuclídeos e metais, tais como lixiviação, eluviação, iluviação, por exemplo. Nestes diagramas, o Al foi utilizado como elemento químico imóvel, como sugere Grant (1986).

Vale salientar, no entanto, que os diagramas ISOCON nesta pesquisa tratam os resultados das análises geoquímicas de amostras com granulometrias específicas para rocha (rocha total cominuída para $< 80 \mu\text{m}$) e solo (peneirado para fração $< 63 \mu\text{m}$), e ainda com ataque químico capaz de extrair apenas a fração biodisponível de cada elemento químico no material analisado. Desta forma, as análises destes diagramas são válidas para condições semelhantes às do presente estudo, mas podem ser complementadas em estudos futuros de detalhe que utilizem análises geoquímicas com ataque químico para extração da fração total dos elementos químicos.

No que se refere à avaliação sobre o uso adequado da área estudada, foram feitas considerações sobre os valores de dose radioativa encontradas nos solos e rochas da área investigada como fator restritivo a determinados usos do solo, tais como para agricultura e habitação.

CAPÍTULO IV

RESULTADOS E DISCUSSÕES

Os resultados analíticos apresentados neste capítulo correspondem à média de duas repetições (o desvio padrão entre estas não foi superior a 5%, como pode ser visto nas Tabelas 7.1 a 7.16 no Anexo 1) em cada análise geoquímica efetuada, excetuando-se apenas as análises radiométricas (radiação gama total *in situ* (medida em campo) e atividade dos radionuclídeos (medida em laboratório) que foram feitas em uma única medida, sem repetição. À exceção das medições feitas em campo para determinação da radiação gama total *in situ*, os demais resultados referem-se às amostras de solo e rocha coletadas em cada um dos perfis rocha-solo estudados. A coleta das amostras e as medições da radiação gama total *in situ* foram realizadas em duas estações climáticas: seca (Fevereiro/2007) e chuvosa (Julho/2007).

4.1 CARACTERIZAÇÃO MORFOLÓGICA DOS PERFIS ROCHA-SOLO

Na área de estudo, foram coletadas no período seco e chuvoso, amostras de 7 perfis rocha-solo. A coleta foi feita em cada um dos horizontes do solo que compunham o perfil, totalizando 28 amostras, sendo 7 de rochas e 21 de solos. Na Figura 3.4, pode-se verificar a localização desses perfis na área de estudo.

Os solos encontrados na área correspondem ao Neossolo Litólico e Neossolo Regolítico que são rasos e pouco profundos (EMBRAPA, 1999), respectivamente.

Os perfis denominados CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05 (Figuras 4.1 a 4.3; e Figura 4.5) correspondem ao Neossolo Litólico sobre a rocha matriz sienogranito albitizado. O perfil CAE-04 (Figura 4.4) corresponde ao Neossolo Litólico sobre a rocha matriz sienogranito. Os perfis CAE-06 e CAE-07 (Figuras 4.6 e 4.7) correspondem ao Neossolo Regolítico desenvolvido sobre o *augen* gnaisse e o granodiorito, respectivamente.

As características morfológicas de todos os sete perfis rocha-solo foram descritas de acordo com os critérios orientadores da Sociedade Brasileira de Ciência do Solo (EMBRAPA, 1999; Santos *et al.*, 2005). Estes perfis são descritos em detalhe (Figuras 4.1 a 4.7), a seguir, ressaltando-se que os limites traçados entre os horizontes de cada um destes

perfis são aproximados, pois a linha de separação entre um horizonte e outro é irregular, sendo considerada a profundidade predominante em cada horizonte (Santos *et al.*, 2005).

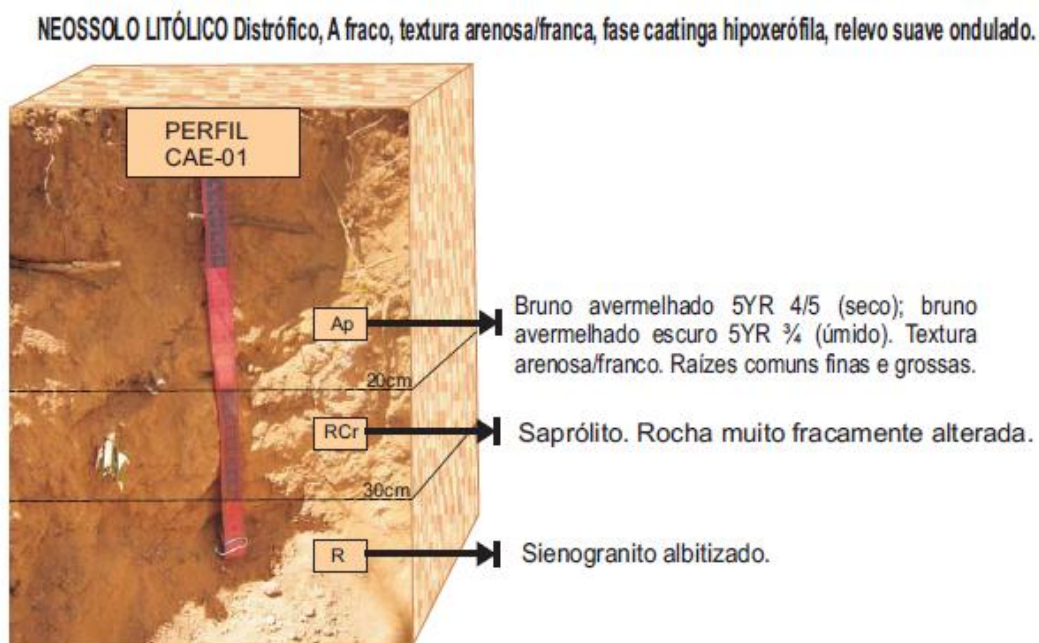


Figura 4.1: Descrição morfológica do perfil CAE-01 (Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

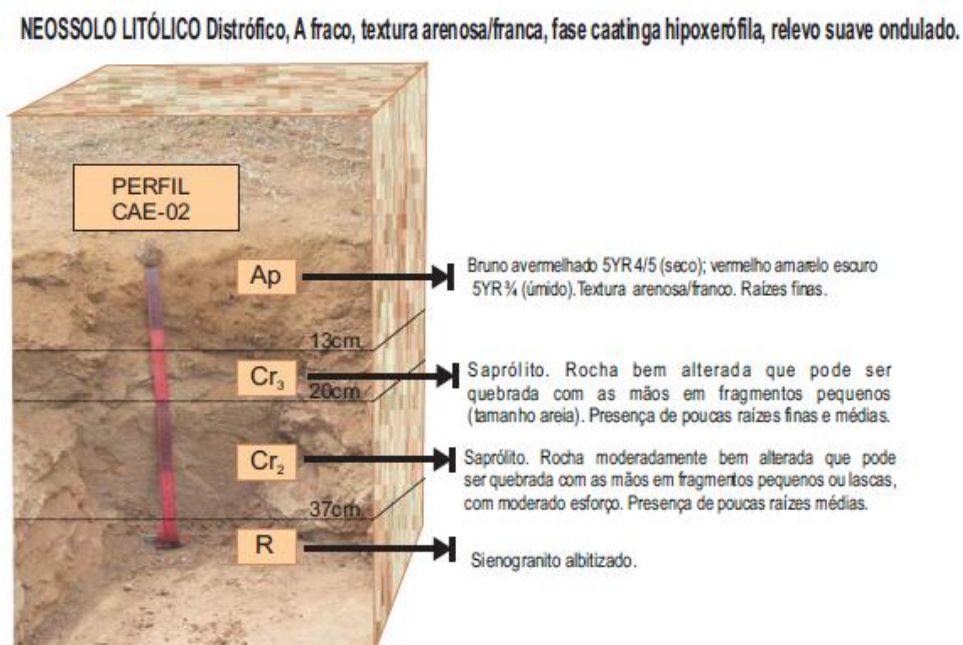


Figura 4.2: Descrição morfológica do perfil CAE-02 (Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

NEOSSOLO LITÓLICO Distrófico, A fraco, textura arenosa/franca, fase caatinga hipoxerófila, relevo suave ondulado.

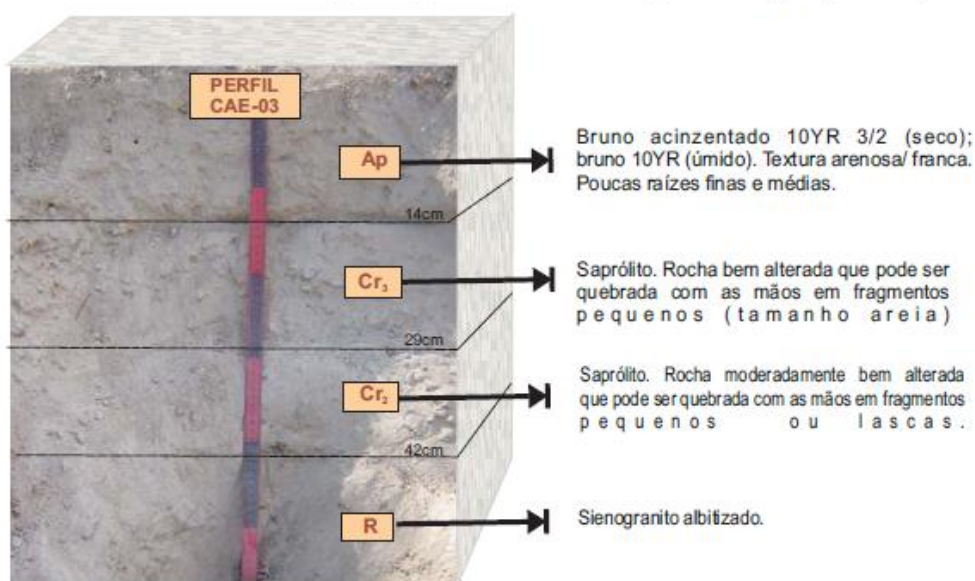


Figura 4.3: Descrição morfológica do perfil CAE-03 (Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

NEOSSOLO LITÓLICO Distrófico, A fraco, textura arenosa/franco, fase caatinga hipoxerófila, relevo suave ondulado.

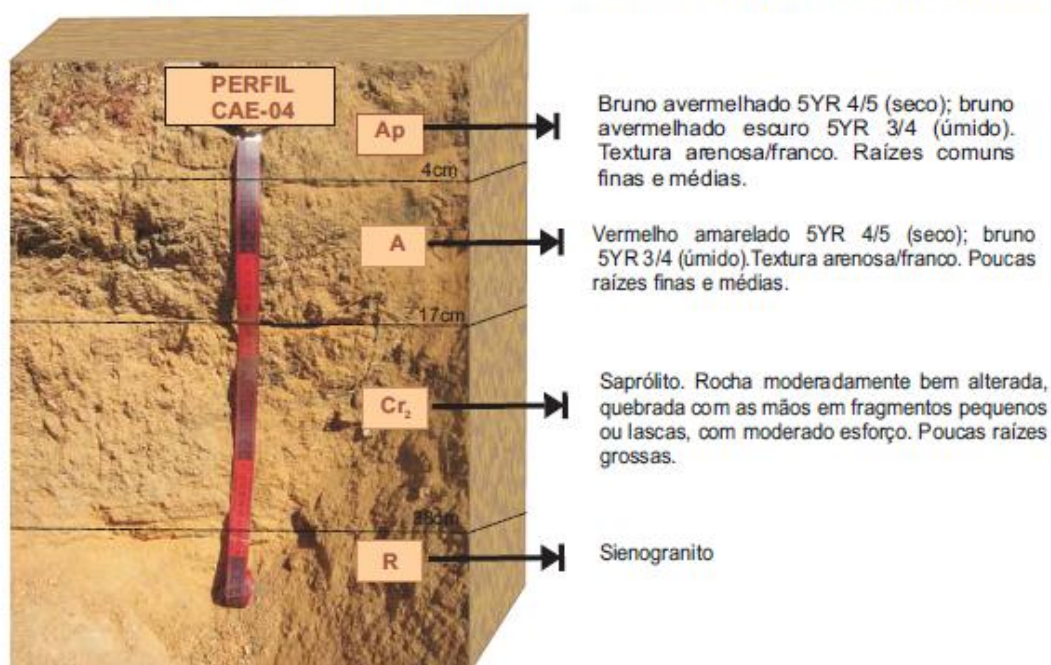


Figura 4.4: Descrição morfológica do perfil CAE-04 (Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

NEOSSOLO LITÓLICO Eutrófico, A fraco, textura arenosa/franco, fase caatinga hipoxerófila, relevo suave ondulado.

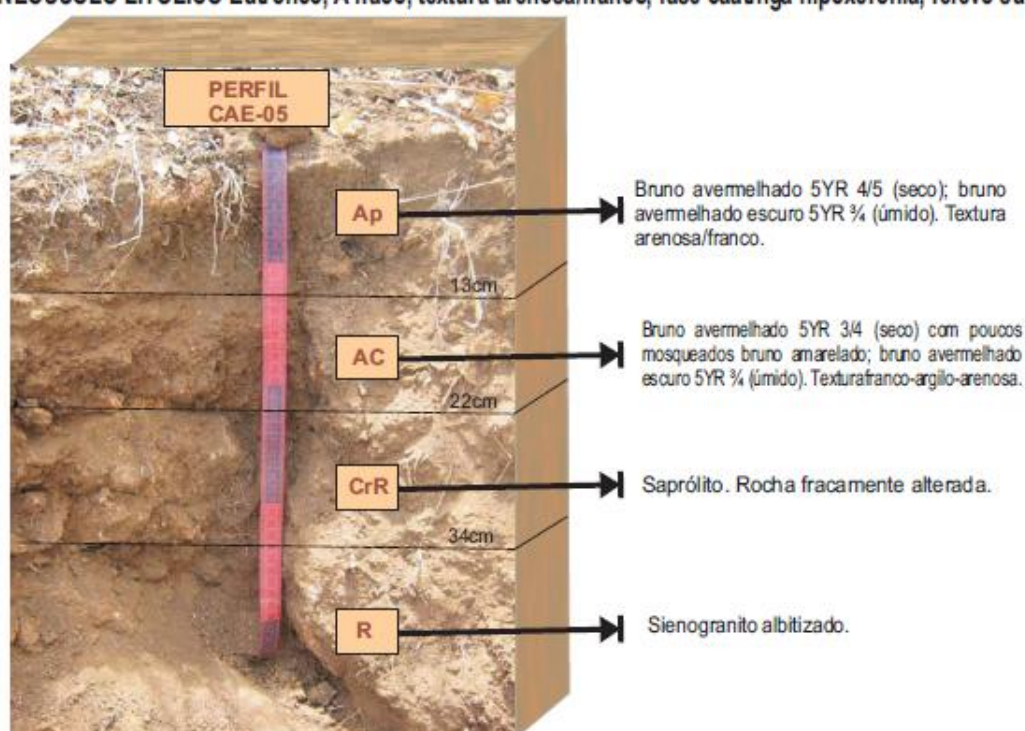


Figura 4.5: Descrição morfológica do perfil CAE-05 (Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

NEOSSOLO REGOLÍTICO Eutrófico léptico, A fraco, textura arenosa/franco, fase caatinga hipoxerófila, relevo suave ondulado.

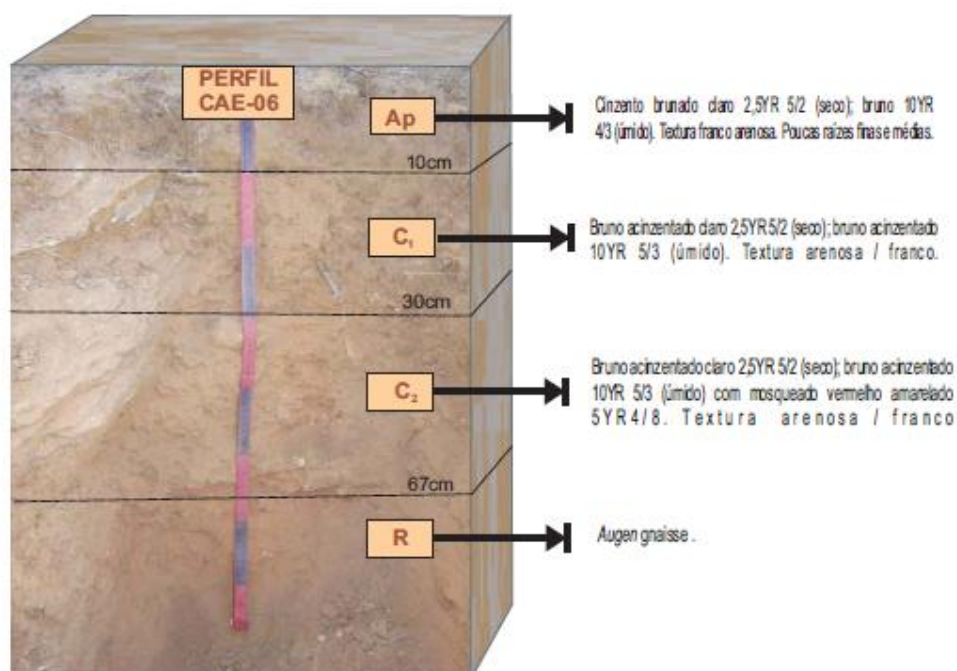


Figura 4.6: Descrição morfológica do perfil CAE-06 (Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Augen Gnaiss) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

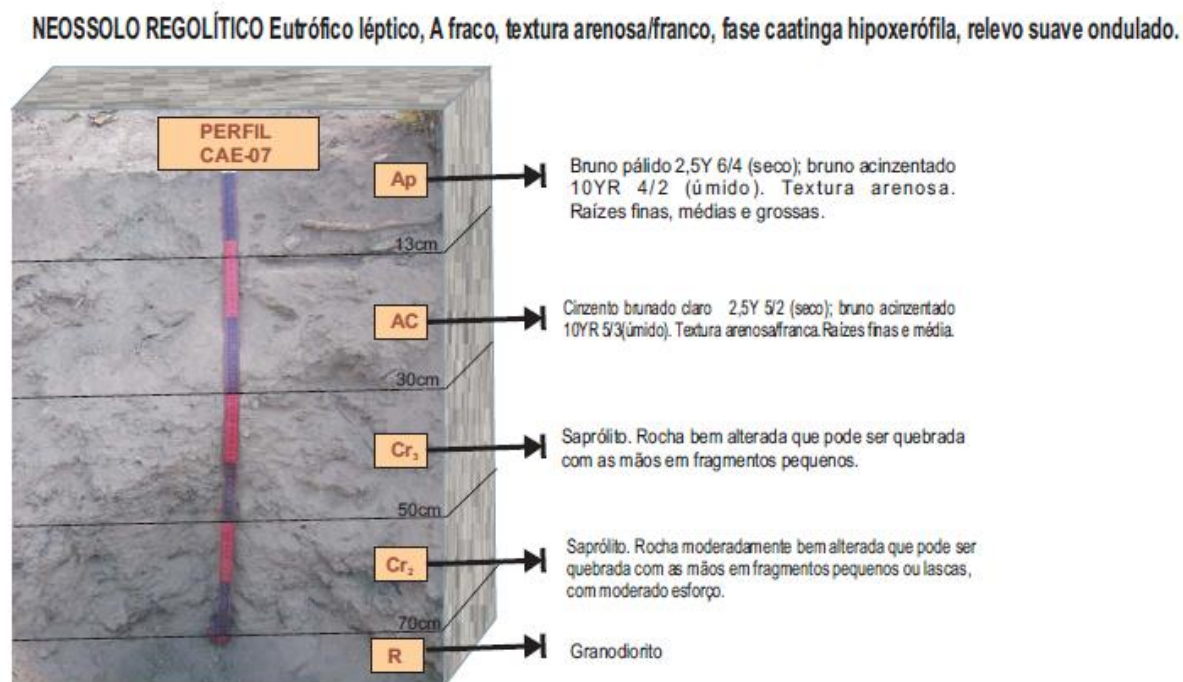


Figura 4.7: Descrição morfológica do perfil CAE-07 (Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito) da área de mineralização em U de São José de Espinharas (PB)

4.2. CARACTERIZAÇÃO FÍSICA DOS PERFIS ROCHA-SOLO

Neste item serão abordados os resultados sobre a análise granulométrica e mineralógica dos solos; densidade das partículas, densidade global e porosidade total dos solos e teor de umidade dos solos e rochas.

4.2.1 Granulometria e Mineralogia

Os solos dos perfis rocha-solo estudados possuem a seguinte composição granulométrica: teores da fração areia oscilando entre 53 a 83%, teores da fração argila entre 9 e 25% e teores da fração silte entre 7 e 21% (Figura 4.8). Estes resultados não sofreram variações consideráveis entre as estações climáticas (seca e chuvosa) consideradas no presente estudo (Tabela 4.1).

Tabela 4.1: Composição granulométrica das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIL	AMOSTRAS	COMPOSIÇÃO GRANULOMÉTRICA (%)					
		AREIA		SILTE		ARGILA	
		Seca	Chuvosa	Seca	Chuvosa	Seca	Chuvosa
CAE-01	Ap	56	57	22	21	22	22
	RCr	63	63	17	16	21	21
	R	---	---	---	---	---	---
CAE-02	Ap	65	65	17	17	18	18
	Cr ₃	69	68	14	15	17	17
	Cr ₂	64	65	15	14	21	21
	R	---	---	---	---	---	---
CAE-03	Ap	82	83	8	8	10	9
	Cr ₃	73	73	10	10	17	17
	Cr ₂	81	80	10	11	9	9
	R	---	---	---	---	---	---
CAE-04	Ap	62	62	18	17	20	20
	A	76	77	12	11	12	12
	Cr ₂	53	53	20	20	27	27
	R	---	---	---	---	---	---
CAE-05	Ap	62	61	17	18	21	21
	AC	67	67	12	13	21	20
	CrR	79	80	8	7	13	13
	R	---	---	---	---	---	---
CAE-06	Ap	70	69	13	14	17	17
	C ₁	65	66	13	12	22	22
	C ₂	67	68	8	7	25	25
	R	---	---	---	---	---	---
CAE-07	Ap	78	78	11	11	11	11
	AC	75	77	1	10	13	13
	Cr ₃	65	65	12	12	23	23
	Cr ₂	72	73	14	13	14	14
	R	---	---	---	---	---	---

O tamanho das partículas que compõem os solos e definem sua textura tem influência direta nas propriedades físicas e químicas do solo (Lepsch, 2002). Todos os perfis rocha-solo estudados possuem solos de textura franco-arenosa e, conseqüentemente, apresentam boa permeabilidade e baixa/média capacidade de retenção de água (Oliveira, 2005).

Em geral, predominou nos horizontes superficiais um maior teor da fração areia que tem importante papel nos processos relacionados ao fluxo de ar e de água, em função de sua participação na distribuição do espaço entre os poros, particularmente os macro e mesoporos (Oliveira, 2005). Por outro lado, esta fração é constituída por partículas de reduzida superfície específica, não são coesivas, não adsorvem filmes de água, não têm ligações eletrostáticas entre si, sendo quimicamente inertes (Selby, 1993).

Solos em cujas texturas predominam areias, como os solos do presente estudo, contêm, em geral, minerais primários mais resistentes ao intemperismo com destaque para o quartzo (SiO₂) (Kampf & Klamt, 1978 *apud* Oliveira, 2005), o que, de fato foi observado nos resultados da análise mineralógica do solo (DRX), referente aos dois primeiros horizontes superficiais (Tabela 4.2).

Estes resultados indicam que predominam nos solos dos perfis estudados, os minerais quartzo (SiO_2), albita ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) e muscovita ($((\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH})_2)$), e, possivelmente, ocorre no perfil CAE-02 a carnotita ($\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{VO}_4)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$), que é um mineral secundário resultante da alteração da uraninita (UO_2). Ocorrendo também, nos perfis CAE-02 e CAE-03, o argilomineral montmorilonita ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot n\text{H}_2\text{O}$) e nos perfis CAE-04, CAE-06 e CAE-07, o argilomineral illita ($\text{K}_{1-1,5}\text{Al}_4(\text{Si}_{7-6,5}\text{Al}_{1-1,5}\text{O}_{20})(\text{OH})_4$).

4.2.2 Densidade das Partículas, Densidade Global e Porosidade Total dos Solos

A densidade das partículas depende da composição mineralógica do solo e varia pouco nos solos minerais. Para fins práticos, atribui-se à densidade das partículas o valor médio de $2,65 \text{ g.cm}^{-3}$ (Couto *et al.*, 2002).

No presente estudo, os valores da densidade das partículas variaram entre 2,50 e $2,63 \text{ g.cm}^{-3}$ (Tabela 4.3), estando dentro dos valores considerados normais para solos minerais.

Os valores de densidade global, em geral, nos solos variam entre valores menores que $1,0 \text{ g.cm}^{-3}$ a valores de até $1,90 \text{ g.cm}^{-3}$ (Couto *et al.*, 2002). No presente estudo, estes valores oscilaram entre 1,02 e $1,57 \text{ g.cm}^{-3}$ (Tabela 4.3), considerados também dentro dos valores normais para solos minerais.

Tabela 4.2: Composição mineralógica dos dois primeiros horizontes dos perfis rocha-solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIL	MINERALOGIA	
	Solo(*)	Rocha (**)
CAE-01 (Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado)	Quartzo (SiO ₂) Albita (NaAlSi ₃ O ₈) Muscovita ((KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)(OH) ₂)	(5-10%) Cloritóide ((Fe ⁺² ,Mg,Mn) ₂ Al ₄ Si ₂ O ₁₀ (OH) ₄) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
		(5-10%) Cloritóide ((Fe ⁺² ,Mg,Mn) ₂ Al ₄ Si ₂ O ₁₀ (OH) ₄) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
CAE-02 (Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado)	Quartzo (SiO ₂) Montmorilonita (Al ₂ Si ₄ O ₁₀ . nH ₂ O) Albita (NaAlSi ₃ O ₈) (?) Carnotita (K ₂ (UO ₂) ₂ (VO ₄) ₂ .3H ₂ O)	(5-10%) Cloritóide ((Fe ⁺² ,Mg,Mn) ₂ Al ₄ Si ₂ O ₁₀ (OH) ₄) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
		(5-10%) Cloritóide ((Fe ⁺² ,Mg,Mn) ₂ Al ₄ Si ₂ O ₁₀ (OH) ₄) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
CAE-03 (Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado)	Quartzo (SiO ₂) Albita (NaAlSi ₃ O ₈) Muscovita ((KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)(OH) ₂) Montmorilonita (Al ₂ Si ₄ O ₁₀ . nH ₂ O)	(10-15%) Biotita (K(Mg,Fe ⁺⁺) ₃ (AlSi ₃ O ₁₀ (OH,F) ₂)) (<5%) Clorita ((Mg,Al,Fe) ₁₂ (Si, Al) ₈ O ₂₀ (OH) ₁₆) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (30-35%) Microclina (KAlSi ₃ O ₈) (<5%) Muscovita ((KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)(OH) ₂) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25%) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (10-15%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (10-15%) Quartzo (SiO ₂) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀))
		(5-10%) Cloritóide ((Fe ⁺² ,Mg,Mn) ₂ Al ₄ Si ₂ O ₁₀ (OH) ₄) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
CAE-04 (Neossolo Litólico / Sienogranito)	Quartzo(SiO ₂), Albita (NaAlSi ₃ O ₈), Ilita (K _{1-1,5} Al ₄ [Si _{7-6,5} Al _{1-1,5} O ₂₀](OH) ₄)	(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (30-35%) Microclina (KAlSi ₃ O ₈) (<5%) Muscovita ((KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)(OH) ₂) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25%) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (10-15%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (10-15%) Quartzo (SiO ₂) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀))
		(5-10%) Cloritóide ((Fe ⁺² ,Mg,Mn) ₂ Al ₄ Si ₂ O ₁₀ (OH) ₄) (<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
CAE-05 (Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado)	Quartzo (SiO ₂) Albita (NaAlSi ₃ O ₈) Muscovita ((KAl ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)(OH) ₂)	(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
		(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (<5%) Hematita (Fe ₂ O ₃) (<5%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (20-25) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (55-60%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%)Turmalina (Na,Ca)(Li,Mg,Al)(Al,Fe,Mn) ₆ (BO ₃) ₃ (Si ₆ O ₁₈)(OH) ₄
CAE-06 (Neossolo Regolítico / Augen Gnaiss)	Quartzo(SiO ₂), Albita (NaAlSi ₃ O ₈), Ilita (K _{1-1,5} Al ₄ [Si _{7-6,5} Al _{1-1,5} O ₂₀](OH) ₄)	(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (25-30%) Hornblenda (Ca ₂ Na(Mg,Fe) ₄ (Al,Fe,Ti)AlSi ₈ AlO ₂₂ (OH,O) ₂) (5-10%) Imenita (FeTiO ₃) (5-10%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (10-15%) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (20-25%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (10-15%) Quartzo (SiO ₂) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%) Titanita (CaTiOSiO ₄)
		(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (25-30%) Hornblenda (Ca ₂ Na(Mg,Fe) ₄ (Al,Fe,Ti)AlSi ₈ AlO ₂₂ (OH,O) ₂) (5-10%) Imenita (FeTiO ₃) (5-10%) Magnetita (Fe ₃ O ₄) (10-15%) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (20-25%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (10-15%) Quartzo (SiO ₂) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%) Titanita (CaTiOSiO ₄)
CAE-07 (Neossolo Regolítico / Granodiorito)	Quartzo(SiO ₂), Albita (NaAlSi ₃ O ₈), Ilita (K _{1-1,5} Al ₄ [Si _{7-6,5} Al _{1-1,5} O ₂₀](OH) ₄)	(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (15-20%) Hornblenda (Ca ₂ Na(Mg,Fe) ₄ (Al,Fe,Ti)AlSi ₈ AlO ₂₂ (OH,O) ₂) (20-25%) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (20-25%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (15-20%) Quartzo (SiO ₂) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%) Titanita (CaTiOSiO ₄)
		(<5%) Epidoto((Ca(Fe ³⁺ , Al)Al ₂ O(SiO ₄)(Si ₂ O ₇)(OH))) (15-20%) Hornblenda (Ca ₂ Na(Mg,Fe) ₄ (Al,Fe,Ti)AlSi ₈ AlO ₂₂ (OH,O) ₂) (20-25%) Ortoclásio (KAlSi ₃ O ₈) (20-25%) Plagioclásio ((Ca, Na)Al (Al,Si)Si ₂ O ₈) (15-20%) Quartzo (SiO ₂) (<5%) Sericita (KAl ₂ (OH) ₂ (AlSi ₃ O ₁₀)) (<5%) Titanita (CaTiOSiO ₄)

(*) Análise por DRX; (**) Análise petrográfica de seção delgada (Souza, 2004).

Tabela 4.3: Densidade das partículas e densidade global das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIL	AMOSTRAS	DENSIDADE (g.cm ⁻³)	
		Das partículas	Global
CAE-01	Ap	2,56	1,39
	RCr	2,60	1,43
	R	---	---
CAE-02	Ap	2,60	1,53
	Cr ₃	2,50	1,02
	Cr ₂	2,56	1,46
	R	---	---
CAE-03	Ap	2,63	1,57
	Cr ₃	2,53	1,27
	Cr ₂	2,60	1,57
	R	---	---
CAE-04	Ap	2,56	1,42
	A	2,60	1,50
	Cr ₂	2,50	1,36
	R	---	---
CAE-05	Ap	2,53	1,35
	AC	2,53	1,31
	CrR	2,50	1,11
	R	---	---
CAE-06	Ap	2,56	1,48
	C ₁	2,60	1,41
	C ₂	2,56	1,36
	R	---	---
CAE-07	Ap	2,63	1,54
	AC	2,60	1,54
	Cr ₃	2,60	1,44
	Cr ₂	2,63	1,54
	R	---	---

A partir dos valores da densidade das partículas e da densidade global, calculou-se a porosidade total (%) de cada horizonte nos perfis rocha-solo (Figura 4.8), segundo a equação descrita no capítulo 3 (item 3.4.2.1.4), obtendo-se valores que variaram entre 39,61 e 59,2%. Em solos arenosos como os investigados nesta pesquisa, a porosidade total é, em média, de 40% (Dijkerman, 1981 *apud* Oliveira, 2005), corroborando com os resultados encontrados no presente estudo.

A densidade global do solo, juntamente com a porosidade, dá uma idéia do seu grau de compactação. Em solos com elevado grau de compactação, os valores da densidade global são mais elevados (Couto *et. al.*, 2002 *apud* Oliveira, 2005). Já a porosidade do solo está diretamente relacionada ao empacotamento das partículas primárias. Quanto maior a diversidade granulométrica dos grãos de areia (material mal selecionado), maior a possibilidade de empacotamento mais fechado devido à habilidade dos grãos menores penetrar nos espaços deixados pelos grãos maiores (Panayiotopoulos & Mullins, 1985), resultando em maiores densidades e maior grau de compactação, consequentemente.

No caso dos perfis rocha-solo estudados, pode-se afirmar que, a partir dos parâmetros considerados neste item, os solos possuem predominantemente poros do tipo macroporo, compatível com sua textura e não estão compactados.

É importante salientar que os resultados referentes à densidade das partículas, densidade global e porosidade total dos solos estudados, não sofreram variações entre as estações climáticas consideradas no presente estudo.

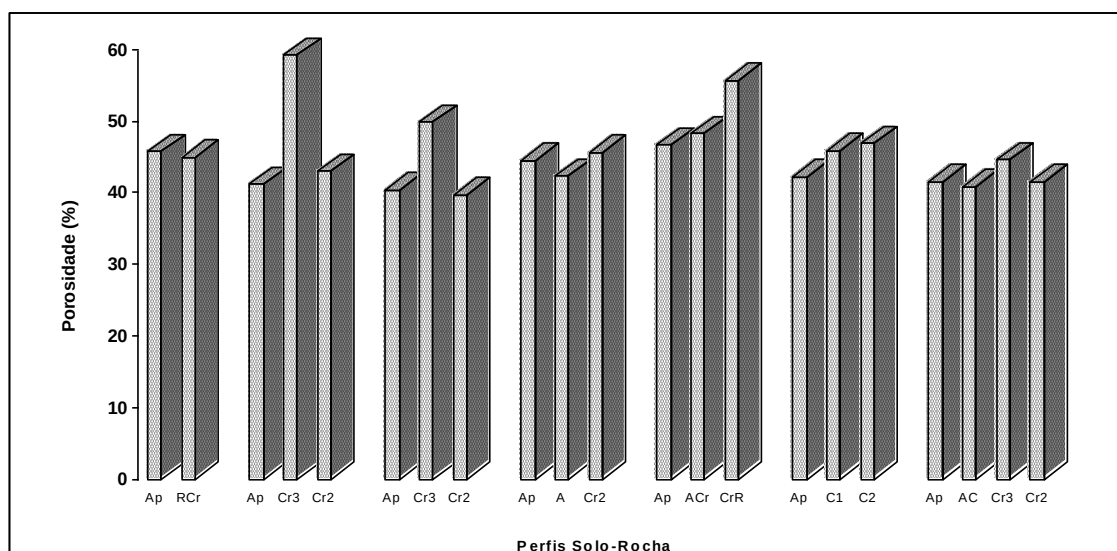


Figura 4.8: Porosidade total (%) das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB)

4.2.3 Teor de Umidade dos Solos e Rochas

Os teores de umidade nas amostras de solo variaram entre 0 e 3,8% e entre 1 a 7,5% nas estações seca e chuvosa respectivamente e, nas amostras de rocha os teores de umidade variaram entre 1 e 3,5% na estação seca e entre 1 a 3% na estação chuvosa (Figura 4.9). Em geral, esses teores foram coerentes com os tipos de solos encontrados e as condições climáticas locais, uma vez que estes solos são de pequena profundidade, arenosos e com alta porosidade, o que facilita a perda de umidade para a atmosfera, especialmente na estação seca (Lepsch, 2002; Oliveira, 2005). Estes resultados corroboram com a afirmação de que em geral, a textura arenosa condiciona a pequena capacidade de retenção de umidade, de maneira que os solos arenosos, ao longo do perfil, são em geral, em igualdade de condições, mais secos do que os outros de textura mais fina (Oliveira, 2005).

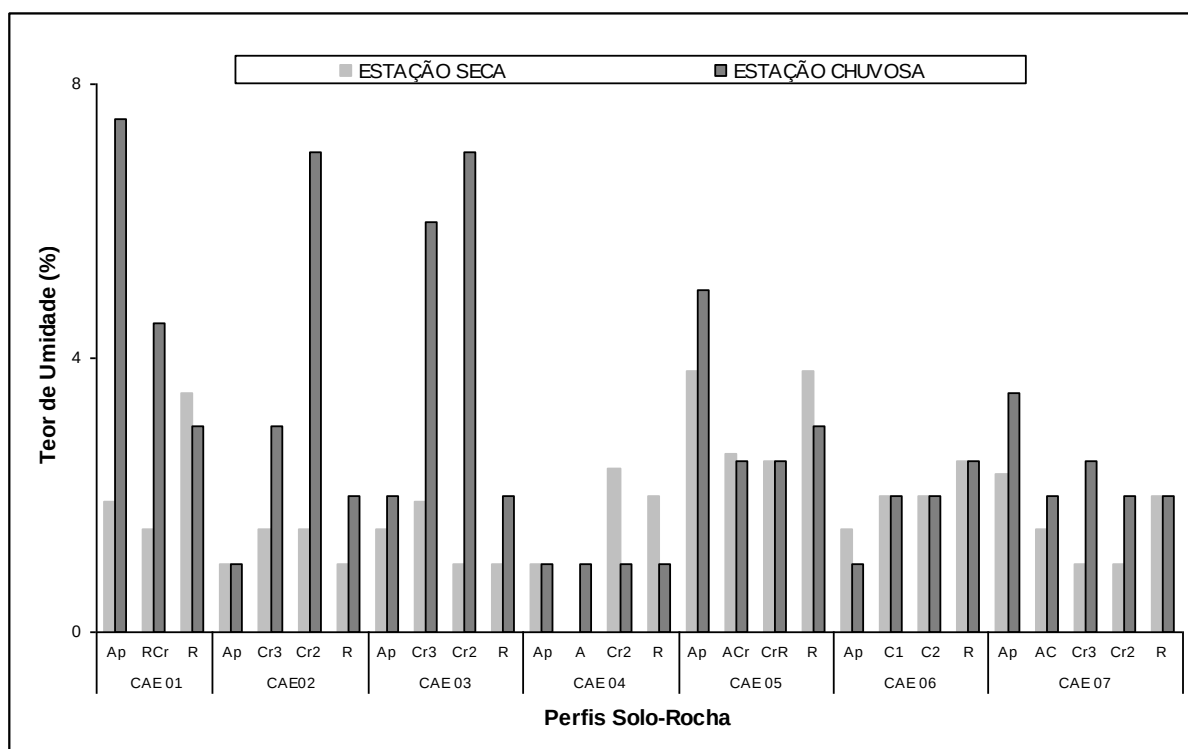


Figura 4.9: Teor de umidade das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB)

4.3 GEOQUÍMICA DOS PERFIS ROCHA-SOLO

4.3.1 Conteúdo de Matéria Orgânica nos solos

A concentração de matéria orgânica (Figura 4.10) variou entre 0-3% na estação seca e entre 1-3% na estação chuvosa, mas tal variação não deveria ser considerada significativa quando se leva em conta a precisão do método analítico utilizado (combustão por via seca). Em geral, estas concentrações nos solos dos perfis investigados, decresceram do horizonte superficial para os subsuperficiais, em ambas as estações climáticas. Isto decorre do fato de que nos horizontes superficiais há, geralmente, uma maior concentração de atividade biológica e, conseqüentemente, maior quantidade de matéria orgânica.

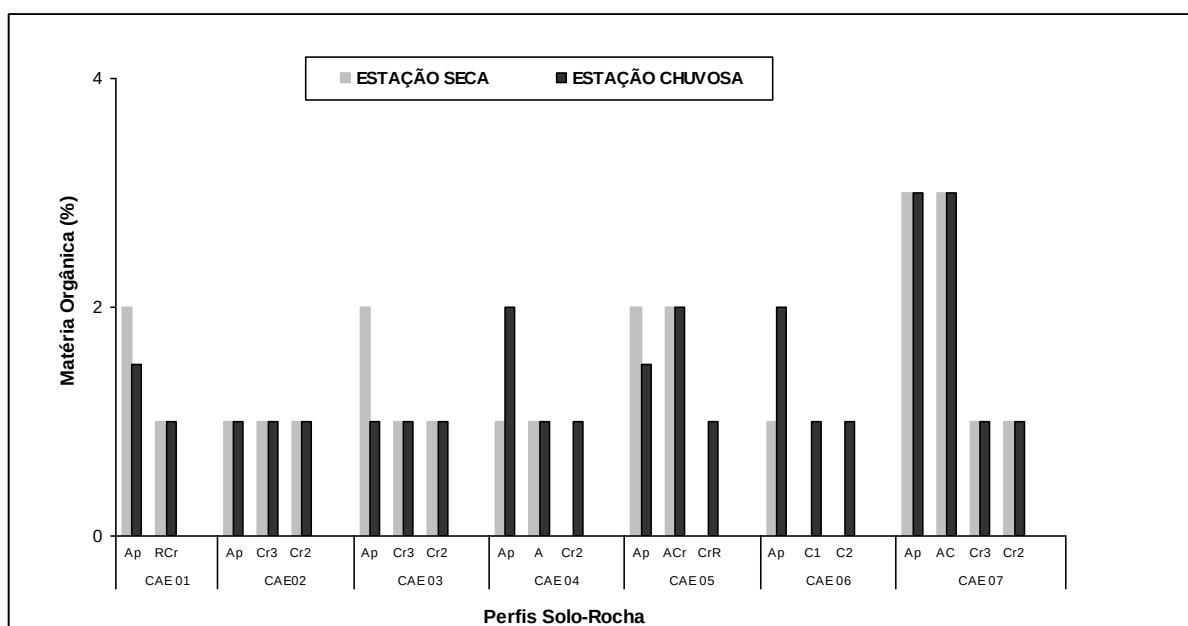


Figura 4.10: Concentração de matéria orgânica das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

4.3.2 Concentração de Carbonatos Totais nos Solos e Rochas

O conteúdo de carbonatos totais variou de 0 a 5% (Figura 4.11) nas amostras de solo estudadas, em ambas as estações climáticas. Analisando-se os perfis de Neossolo Litólico sobre o sienogranito albitizado (CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05), pode-se verificar que, na maioria destes, as concentrações de carbonatos totais se distribuíram de forma semelhante nos horizontes superficiais, em ambas as estações climáticas. Excetuando-se apenas os horizontes dos perfis CAE-02 e CAE-05 que apresentaram valores relativamente maiores na estação seca. Entretanto as diferenças de concentrações observadas neste caso não podem ser consideradas significativas. Na rocha estes valores foram variáveis chegando a zero nos perfil CAE-05.

No perfil de Neossolo Regolítico sobre Sienogranito (CAE-04), as concentrações de carbonatos totais se distribuíram de forma semelhante nos dois primeiros horizontes na estação seca e um pouco mais elevada no horizonte superficial na estação chuvosa. Contudo, na rocha não foi registrado nenhum conteúdo de carbonatos totais.

No perfil de Neossolo Regolítico sobre o *Augen* Gnaiss (CAE-06), pode-se verificar que os conteúdos de carbonatos totais foram mais elevados nos horizontes intermediários, sendo, contudo, semelhantes entre o horizonte superficial e a rocha em ambas estações climáticas.

E, no perfil de Neossolo Regolítico sobre o Granodiorito (CAE-07), os teores de carbonatos totais estão distribuídos homogeneamente entre os horizontes superficiais e mais concentrados no horizonte mais próximo à rocha em ambas estações climáticas.

Os resultados encontrados são coerentes com a condição climática do local, onde a evaporação excede a precipitação e os solos mais arenosos e rasos, podem eventualmente, apresentar uma acumulação de carbonatos logo abaixo do horizonte superficial, ou ainda apresentarem valores mais elevados de carbonatos totais na estação seca (Lepsch, 2002; Oliveira, 2005).

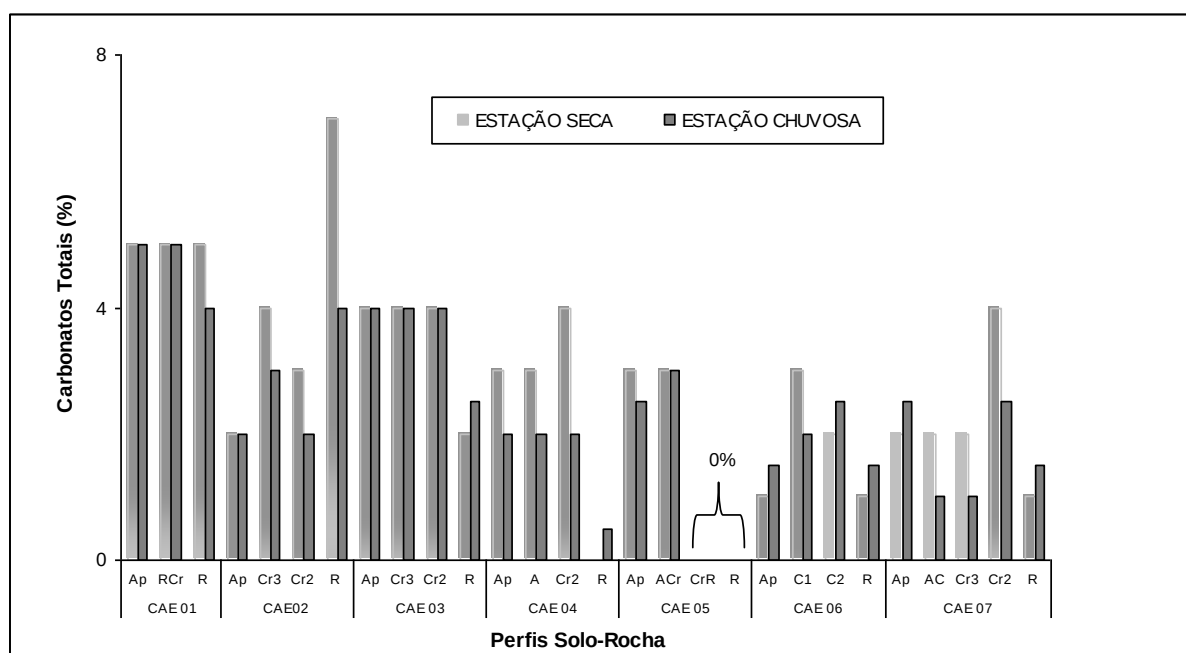


Figura 4.11: Concentração de carbonatos totais das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

4.3.3 pH dos Solos

Os valores de pH das amostras dos horizontes dos solos estudados variaram entre 5,3 e 6,6 (Figura 4.12), evidenciando o caráter ácido a levemente ácido em todos os perfis rocha-solo estudados, nas duas estações climáticas (seca e chuvosa). Estes valores são possivelmente explicados pelas características texturais destes solos, uma vez que solos mais arenosos são, geralmente, mais ácidos (Fassbender & Bornemisza, 1987). Contudo, na maioria dos perfis, no horizonte superficial (horizonte Ap) os valores de pH foram relativamente maiores que os horizontes subsuperficiais (AC, Cr, CrR). Isto possivelmente está relacionado ao maior conteúdo de matéria orgânica dos horizontes superficiais, uma

vez que a matéria orgânica exerce influência significativa na elevação dos valores de pH (Hoyt & Turner, 1975; Lund & Doss, 1980).

Salienta-se, no entanto, que as concentrações de carbonatos totais neste caso não deve ter influenciado os valores de pH dos horizontes do solo, uma vez que não foi observada variação significativa da concentração de carbonatos totais entre os horizontes.

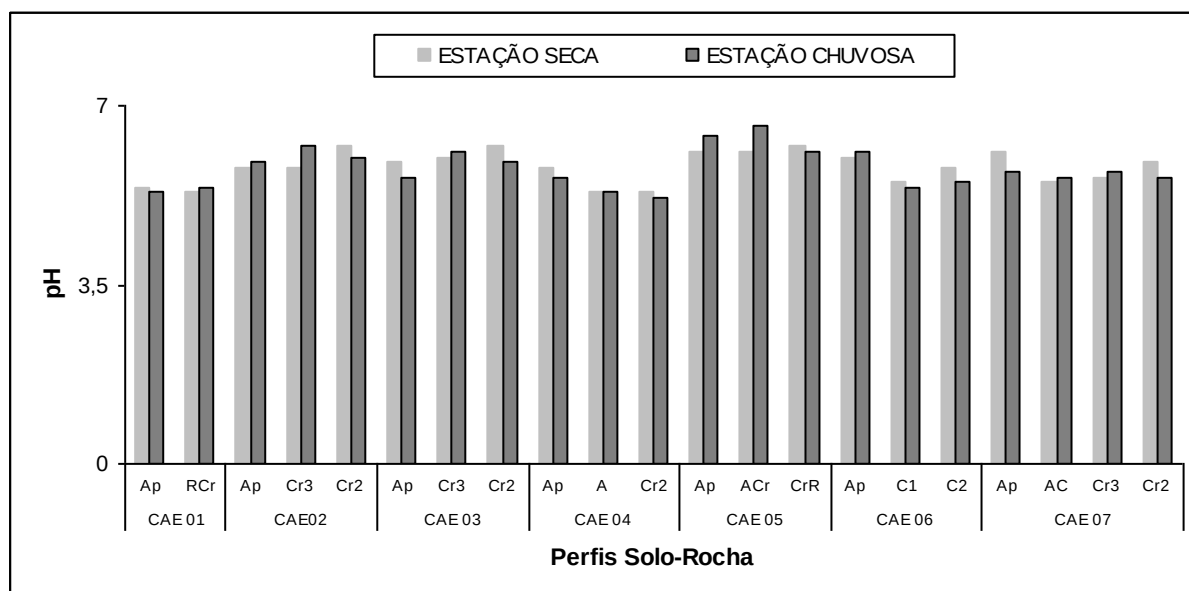


Figura 4.12: Valores de pH das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

4.3.4 Concentração Biodisponível de Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb nos Perfis Rocha-solo

Os metais pesados enfocados no presente estudo são constituintes naturais de rochas e solos, onde ocorrem normalmente em baixas concentrações, não representando, em condições naturais, riscos para o homem, animais ou plantas. Contudo, se estas concentrações forem elevadas podem provocar diversos efeitos toxicológicos na biota, inclusive no ser humano (McBride, 1994; Oliver, 1997).

A fração dos metais pesados analisadas é referente à fração biodisponível, obtida através da digestão das amostras com ácido fraco e diluído (HCl 0,5M), conforme metodologia descrita no Capítulo 3, item 3.4.3.1. O uso deste tipo de solução extratora é mais adequado para simular a dessorção de metais biodisponíveis pelo solo (McLaren *et al.*, 1998). A fração biodisponível é a que está mais fracamente ligada/adsorvida às partículas sólidas do solo e por isso reflete com maior aproximação a biodisponibilidade dos metais presentes neste ambiente (US-EPA, 1998).

De acordo com a classificação geoquímica dos elementos (Goldschmidt, 1945) os elementos enfocados no presente estudo são (entre parênteses estão os elementos químicos que podem ou não ocorrer na associação geoquímica):

- ✓ Siderófilos - possuem afinidade pelo ferro e se concentram no núcleo da Terra, como Fe, Ni, Co, (Pb);
- ✓ Calcófilos – possuem afinidade pelo enxofre e se concentram nos sulfetos, como Fe, (Ni), (Co), Cd, Cu, Pb e (Mn);
- ✓ Litófilos – possuem afinidade com o oxigênio, formando óxidos estáveis, e se concentram na crosta terrestre como Al, Mn, Fe, (Cu), (Pb), (Ni), (Co), (Ra), Th.

Os elementos colocados entre parênteses, embora pertençam preferencialmente a um grupo, podem, eventualmente apresentar um comportamento que se enquadre em outro grupo, dependendo das condições físico-químicas do meio (Jackson, 1964).

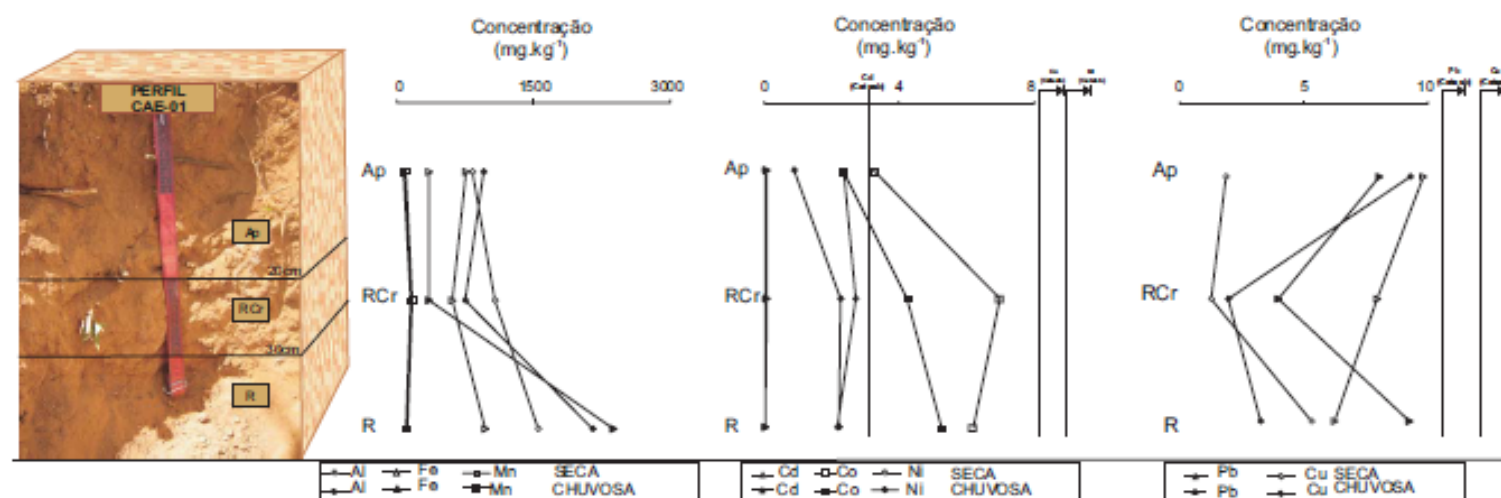
A classificação geoquímica dos elementos acima referida é eficiente para explicar a distribuição dos elementos menores e traços em minerais e rochas, principalmente para os elementos litófilos, uma vez que os elementos químicos agrupam-se segundo regras de comportamento e de afinidade que possibilitam predizer a presença de um elemento quando detectada a presença de outro com o qual tenha afinidade geoquímica (Warren & Delavault, 1958). Com base na similaridade geoquímica discutida acima, no presente estudo os metais pesados investigados foram separados em três grupos: (i) Al, Fe e Mn; (ii) Cd, Co e Ni e (iii) Cu e Pb.

Nas Figuras 4.13 a 4.19 estão discriminadas as concentrações e respectivas distribuições dos elementos Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb biodisponíveis, registradas nas amostras de solos e rochas de cada um dos perfis rocha-solo estudados.

Comparando-se os valores das concentrações dos metais pesados encontrados nos solos e rochas dos perfis estudados com os valores orientadores propostos por três agências ambientais, a saber: brasileira (CETESB, 2005), holandesa (VROM, 1994) e americana (US-EPA, 1996) (Tabela 4.4), verifica-se que, em nenhum dos perfis rocha-solo estudados nas duas estações climáticas, as concentrações dos metais pesados ficaram acima dos valores de intervenção para uso agrícola (APMax) segundo os padrões de referência brasileiros, ou de intervenção para uso residencial segundo os padrões de referência americanos, ou ainda, de intervenção segundo os padrões de referência holandeses.

Estes padrões de referência foram escolhidos para comparação porque a área investigada é predominantemente utilizada para fins residenciais e atividades agropastoris. Neste contexto, os resultados obtidos indicam que não existem riscos para a saúde humana ou para o ambiente relacionados ao uso destes solos no tocante ao seu conteúdo biodisponível dos metais Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb.

Deve-se ressaltar que o ataque químico utilizado no estabelecimento dos valores orientadores mencionados acima foi para a digestão total. As concentrações dos elementos químicos desta pesquisa foram obtidas através da digestão parcial, que produz resultados referentes às concentrações biodisponíveis. Entretanto, estes valores orientadores foram usados por não se ter estabelecido os níveis de *background* para a área estudada, e pelo fato de que os dados obtidos nesta pesquisa não serem considerados espacialmente representativos da área para o estabelecimento do *background*.



		ELEMENTOS															
		Al		Fe		Mn		Cd		Co		Ni		Cu		Pb	
		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)	
PERFIL	AMOSTRA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA
CAE-01	Ap	870,00	1.077,00	512,00	405,00	105,30	79,90	0,08	0,03	3,20	2,50	4,00	1,10	1,70	1,60	9,10	7,90
	RCr	1.150,00	791,00	652,00	375,00	183,00	164,00	0,11	0,02	7,00	4,26	3,70	3,30	1,14	1,90	7,50	3,90
	R	1.700,00	2.439,00	1.234,00	2.650,00	122,00	109,00	0,04	0,02	6,20	5,40	3,00	2,20	4,90	3,20	5,95	8,50
Padrões de referência																	
(1) CETESB (mg.kg⁻¹)		---	---	---	---	---	---	3	---	35	---	70	---	200	---	180	---
(2) Holanda (mg.kg⁻¹)		---	---	---	---	---	---	12	---	240	---	210	---	190	---	530	---
(3) IEUA (mg.kg⁻¹)		---	---	---	---	---	---	78	---	---	---	1600	---	---	---	400	---

(1) Valor de intervenção (Agricultura de Proteção Médica) (CETESB, 2005); (2) Valor de intervenção (NRCM, 1994); (3) Intervenção para uso residencial (EPA, 1996).

Figura 4.13: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-01 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)

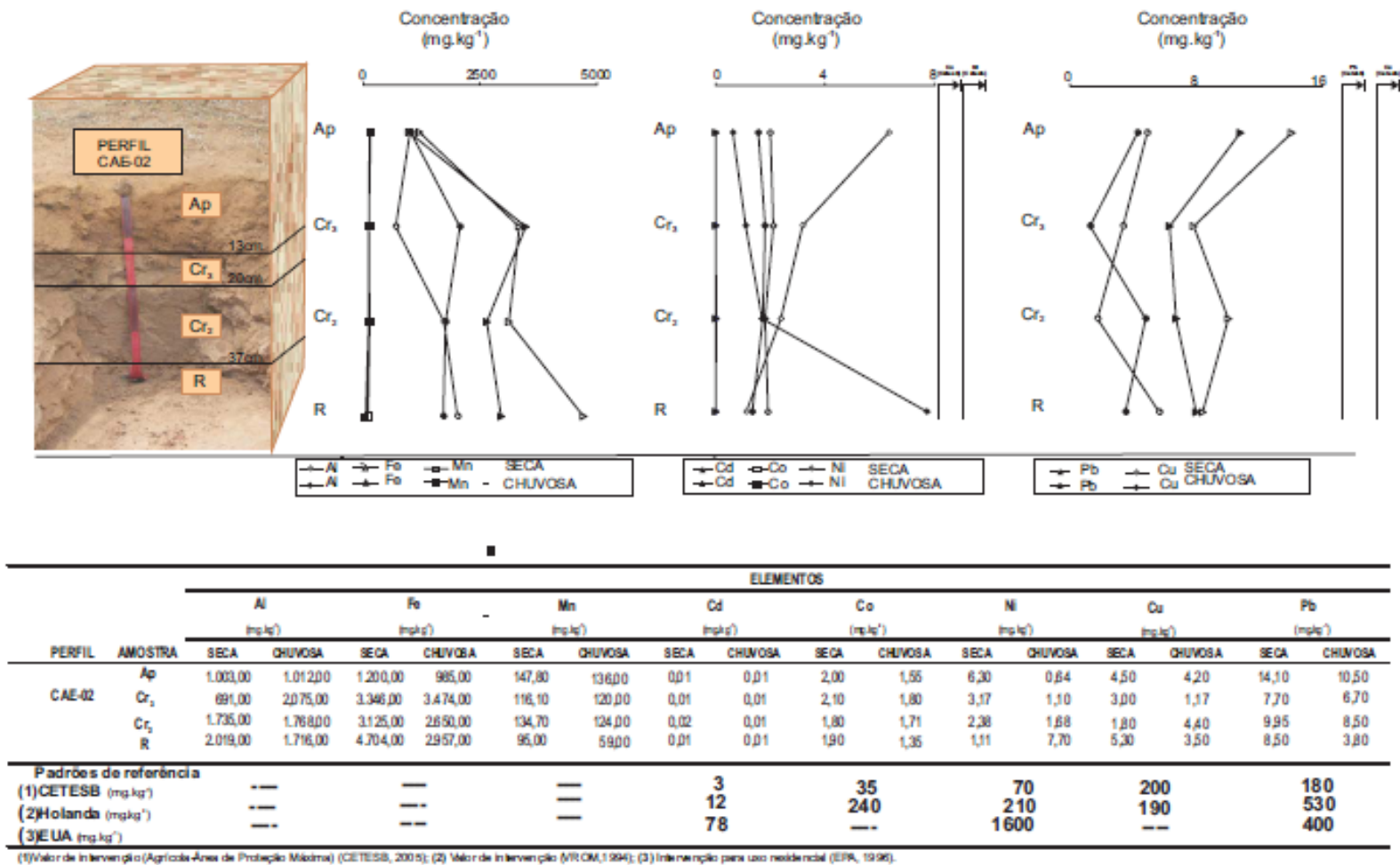
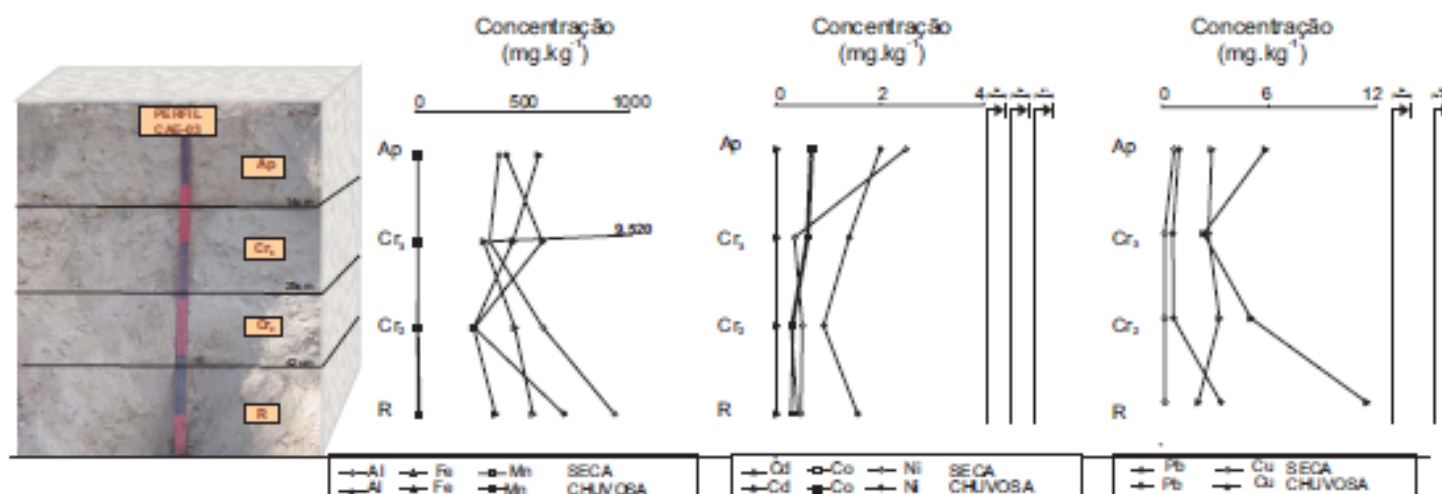


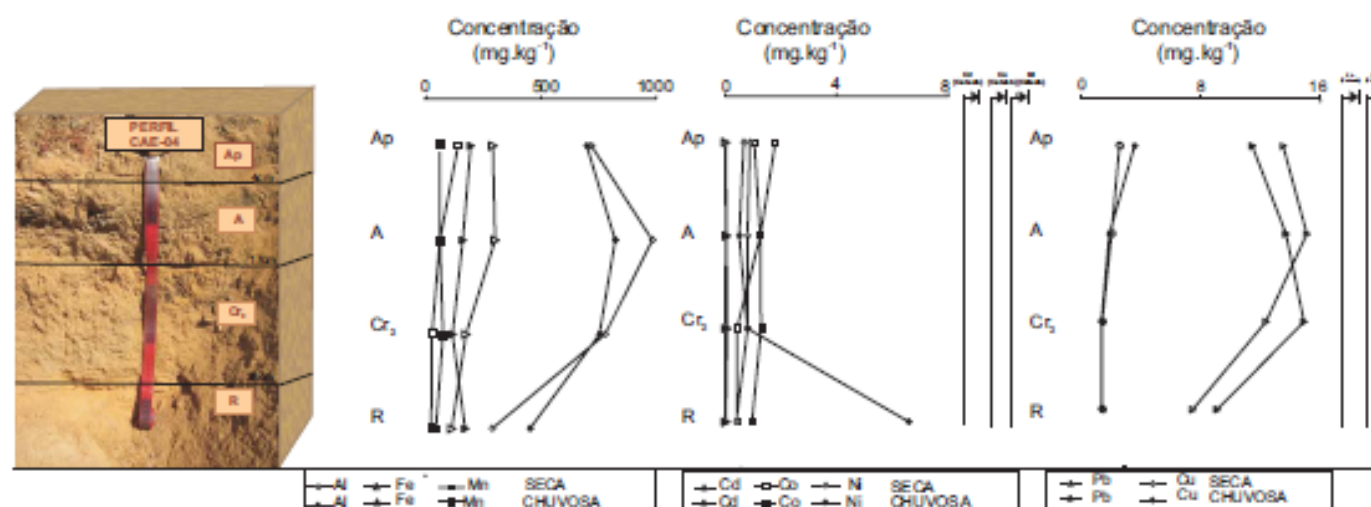
Figura 4.14: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-02 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)



		ELEMENTOS															
		Al		Fe		Mn		Cd		Co		Ni		Cu		Pb	
		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)	
PERFIL	AMOSTRA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA
CAE-03	Ap	394,00	420,00	9.520,00	575,00	4,60	2,90	0,01	0,01	0,70	0,64	2,49	2,00	0,70	0,95	2,80	5,80
	Cr ₁	340,00	590,00	314,00	450,00	2,66	3,83	0,01	0,01	0,61	0,58	0,34	1,40	0,16	0,60	2,60	2,35
	Cr ₂	595,00	269,00	460,00	267,00	1,47	2,43	0,01	0,01	0,31	0,27	0,50	0,90	0,16	0,67	3,25	5,00
	R	933,00	693,00	545,00	367,00	4,47	10,00	0,01	0,01	0,27	0,40	0,47	1,56	0,16	3,30	2,05	11,50
Padrões de referência																	
(1) CETESB (mg.kg⁻¹)		---		---		---		3		35		70		200		180	
(2) Holanda (mg.kg⁻¹)		---		---		---		12		240		210		190		530	
(3) IEUA (mg.kg⁻¹)		---		---		---		78		---		1600		---		400	

(1) Valor de intervenção (Agricultura de Proteção Médica) (CETESB, 2005); (2) Valor de intervenção (VROM, 1994); (3) Intervenção para uso residencial (EPA, 1995).

Figura 4.15: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-03 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)



		ELEMENTOS															
		Al		Fe		Mn		Cd		Co		Ni		Cu		Pb	
PERFIL	AMOSTRA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA
CAE-04	Ap	717,00	697,00	290,00	193,00	137,87	69,50	0,02	0,01	1,06	1,81	0,88	0,68	1,40	2,50	13,30	11,05
	A	983,00	822,00	300,00	157,00	58,50	59,50	0,04	0,02	1,27	1,26	0,80	0,52	0,85	0,70	15,00	13,50
	C _r	775,00	751,00	171,08	112,00	25,30	70,50	0,08	0,01	0,43	1,30	0,81	0,81	0,16	0,13	12,05	14,80
	R	285,00	450,00	110,00	170,00	20,70	40,70	0,04	0,01	0,42	0,98	0,40	6,60	0,16	0,13	6,70	8,50
Padrões de referência																	
(1) CETESB (mg.kg ⁻¹)		---	---	---	---	---	---	3	12	35	240	70	210	200	190	180	530
(2) Holanda (mg.kg ⁻¹)		---	---	---	---	---	---	78	---	---	---	1600	---	---	---	---	---
(3) IEUA (mg.kg ⁻¹)		---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---	---

(1) Valor de intervenção (Agricultura Área de Proteção Máxima) (CETESB, 2005); (2) Valor de intervenção (MROCM, 1994); (3) Intervenção para uso residencial (EPA, 1996).

Figura 4.16: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-04 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)

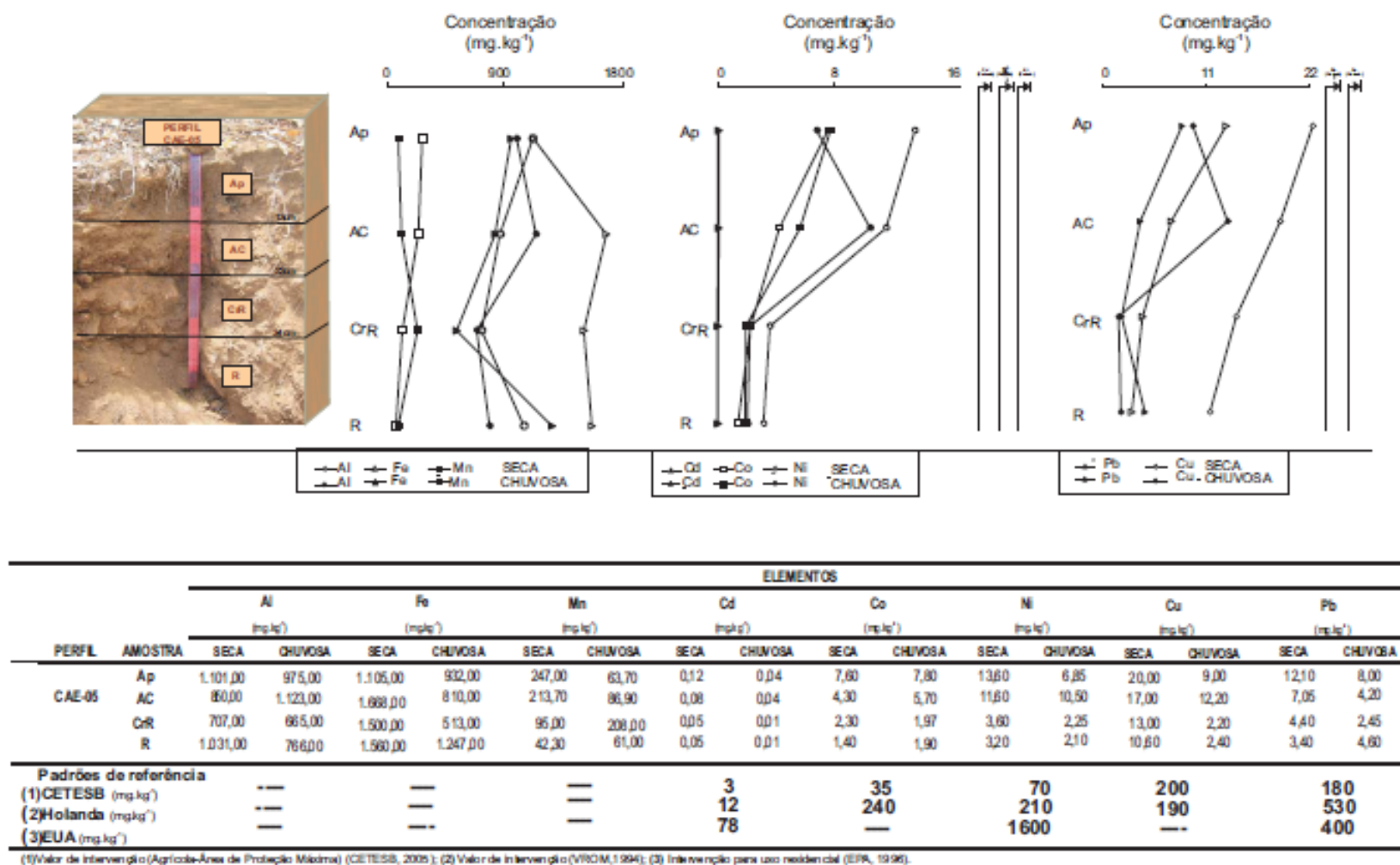
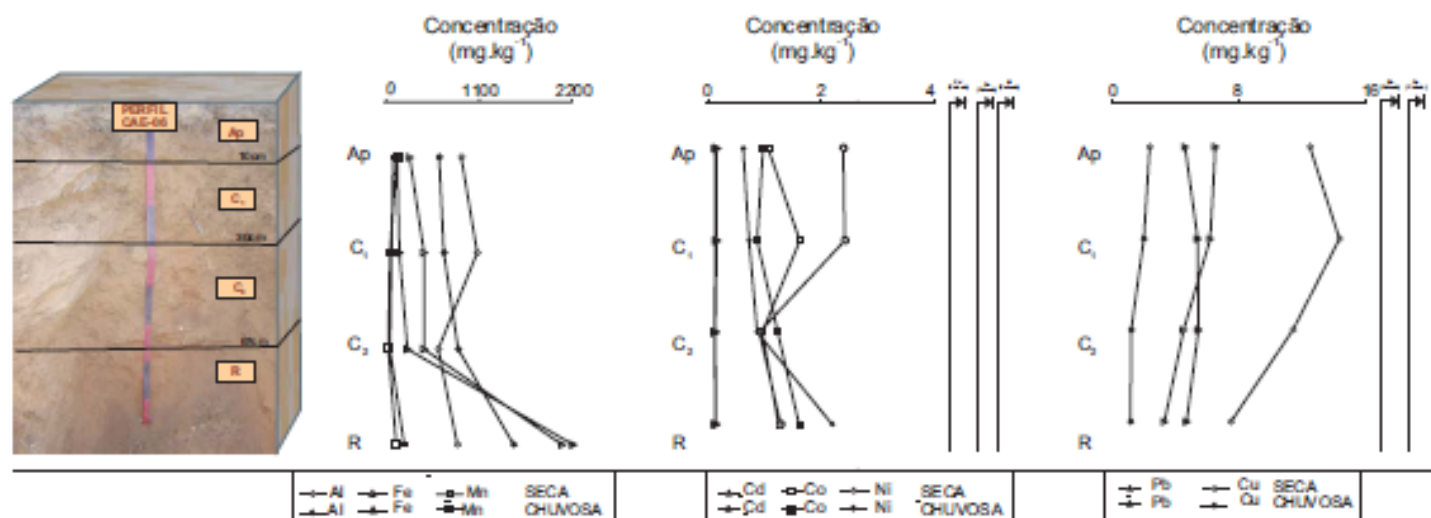


Figura 4.17: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-05 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)



		ELEMENTOS															
		Al		Fe		Mn		Cd		Co		Ni		Cu		Pb	
		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)		(mg.kg⁻¹)	
PERFIL	AMOSTRA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA
CAE-06	Ap	802,00	975,00	293,00	138,00	137,30	87,70	0,05	0,01	1,00	0,91	2,40	0,54	13,10	1,90	6,50	4,40
	C ₁	850,00	993,00	415,00	147,00	66,90	92,50	0,04	0,01	1,60	0,80	2,43	0,65	15,20	1,50	6,15	5,25
	C ₂	707,00	627,00	425,00	254,00	41,50	77,00	0,02	0,01	0,90	1,18	0,84	0,80	11,90	0,62	4,30	5,30
	R	1.031,00	771,00	1.909,00	2.096,00	133,70	66,00	0,02	0,02	1,20	1,58	1,24	2,20	7,60	0,58	2,95	4,50
Padrões de referência																	
(1) CETESB (mg.kg⁻¹)		---	---	---	---	---	---	3	---	35	---	70	---	200	---	180	---
(2) Holanda (mg.kg⁻¹)		---	---	---	---	---	---	12	---	240	---	210	---	190	---	530	---
(3) IEUA (mg.kg⁻¹)		---	---	---	---	---	---	78	---	---	---	1600	---	---	---	400	---

(1) Valor de intervenção (Agricultura de Proteção Máxima) (CETESB, 2005); (2) Valor de intervenção (MROM, 1994); (3) Intervenção para uso residencial (EPA, 1996).

Figura 4.18: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-06 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)

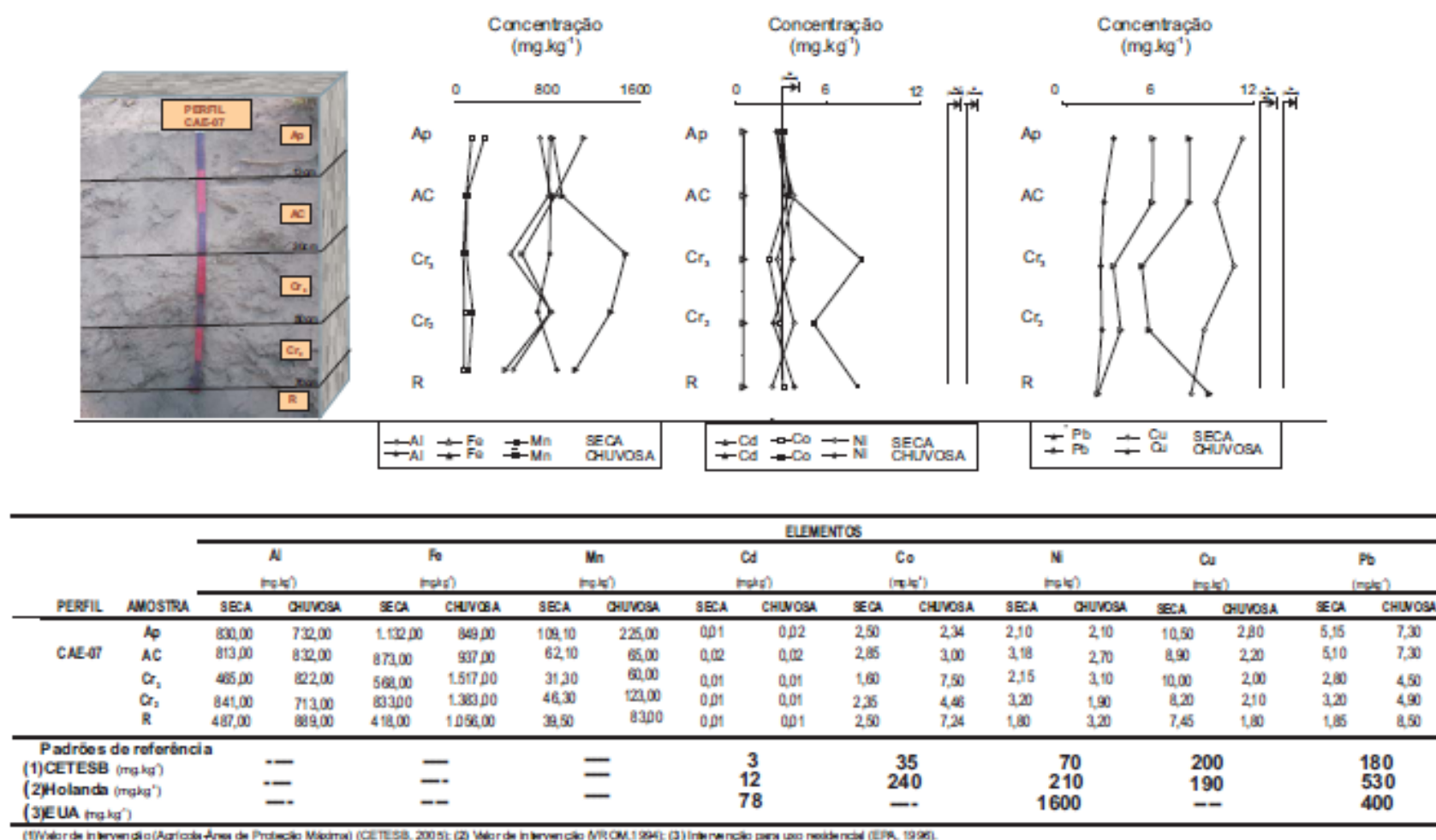


Figura 4.19: Concentração biodisponível dos metais Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb no perfil CAE-07 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB)

Tabela 4.4: Valores orientadores para metais pesados em solos de vários países (¹CETESB, 2005; ²VROM, 1994; ³US-EPA, 1996)

ELEMENTO	¹ BRASIL						³ ESTADOS UNIDOS	
	Referência de qualidade (mg.Kg ⁻¹)	Prevenção (mg.Kg ⁻¹)	Intervenção (mg.Kg ⁻¹)			² HOLANDA Intervenção (mg.Kg ⁻¹)	Residencial (mg.Kg ⁻¹)	Industrial (mg.Kg ⁻¹)
			Agrícola	Residencial	Industrial			
Al	----	----	----	----	----	----	----	----
Fe	----	----	----	----	----	----	----	----
Mn	----	----	----	----	----	----	----	----
Cd	<0,5	1,3	3	8	20	12	78	2.000
Co	13	25	35	65	90	240	----	----
Ni	13	30	70	100	130	210	1.600	41.000
Pb	17	72	180	300	900	530	400	----
Cu	35	60	200	400	600	190	----	----

4.3.4.1 Qualidade dos dados analíticos dos metais pesados

Nos anexos 7.1 a 7.16, podem ser visualizados todos os resultados referentes a cada um dos metais pesados nas amostras de solo e rocha analisadas, e seus respectivos parâmetros habitualmente usados para avaliação da qualidade dos resultados obtidos, tais como limite de detecção, limite de quantificação, exatidão e precisão.

É importante ressaltar que, de acordo com o INMETRO (2007):

- ✓ O limite de detecção do método é definido como a concentração mínima de um elemento ou substância medida e declarada com 95% ou 99% de confiança de que a concentração do analito (elemento ou substância analisada) é maior que zero;
- ✓ O limite de quantificação é a menor concentração do elemento ou substância que pode ser determinada com um nível aceitável de exatidão e precisão. Algumas vezes é também denominado “limite de determinação”. Na prática, corresponde normalmente ao padrão de calibração de menor concentração (excluindo o branco). Este limite, após ter sido determinado, deve ser testado para averiguar se a exatidão e a precisão conseguidas são satisfatórias;
- ✓ Exatidão do método é definida como sendo a concordância entre o resultado de um ensaio e o valor de referência aceito como convencionalmente verdadeiro. Os processos normalmente utilizados para avaliar a exatidão de um método são, entre outros: uso de materiais de referência certificado (MRC), participação em comparações interlaboratoriais e realização de ensaios de recuperação. No caso do presente estudo, foi considerado como padrão de referência certificado o IAEA-Soil 7 (*Trace elements in soil*) (Pszonicki *et al.*, 1984). E, como forma de avaliar a exatidão do método, foi calculado o erro relativo (ER), expresso em percentagem e obtido pela expressão abaixo.

$$ER = \frac{X_{lab} - X_v}{X_v} \cdot 100$$

onde:

X_{lab} = valor obtido experimentalmente ou média aritmética de valores obtidos

X_v = valor aceito como verdadeiro (valor certificado do MRC)

- ✓ Precisão é um termo geral para avaliar a dispersão de resultados entre ensaios independentes, repetidos de uma mesma amostra, amostras semelhantes ou padrões, em condições definidas. É usualmente expressa pelo desvio-padrão considerada duas repetições para cada valor medido.

4.5 CARACTERIZAÇÃO RADIOMÉTRICA DOS PERFIS ROCHA-SOLO

Este item engloba três parâmetros radiométricos: radiação gama total *in situ*, a concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e suas respectivas atividades. Todos estes parâmetros podem ser visualizados nas Figuras 4.20 a 4.27.

4.5.1 Radiação Gama Total *in situ*

De uma maneira geral, no período chuvoso, os valores da radiação gama total *in situ* (Figuras 4.20 a 4.26 (a)) emitida pelos solos e rochas nos sete perfis investigados, foram mais elevados que os valores do período seco, provavelmente refletindo a mobilização de radionuclídeos no período chuvoso. Isto será discutido com mais detalhes no item 4.7, referente ao estudo da mobilidade dos radionuclídeos nos perfis rocha-solo.

Os maiores valores de da radiação gama total *in situ* (Tabela 4.5) ocorrem no perfil rocha-solo CAE-02, cujo solo é o Neossolo Litólico e a rocha é o Sienogranito albitizado. Este perfil CAE-02 encontra-se sobre a rocha mineralizada em U, como também ocorre com os perfis CAE-01 e CAE-03. Entretanto, é o perfil que apresenta as maiores concentrações e atividades específicas dos elementos U e Th, o que reflete diretamente na elevação dos valores da radiação gama total *in situ*.

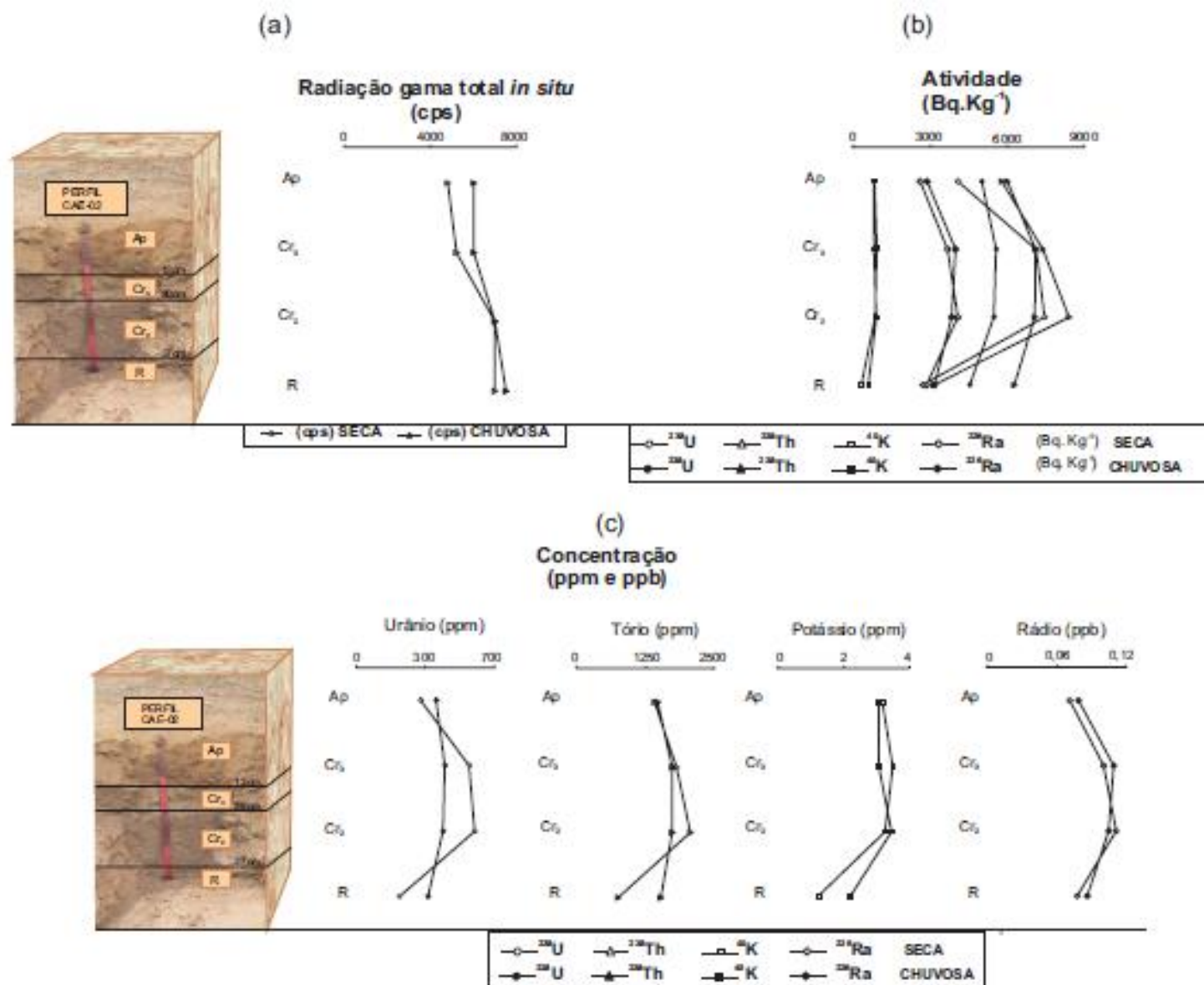


Figura 4.21: Radiação gama total *in situ* (a), atividade específica (b) e concentração (c) dos radionuclídeos no perfil CAE-02 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB).

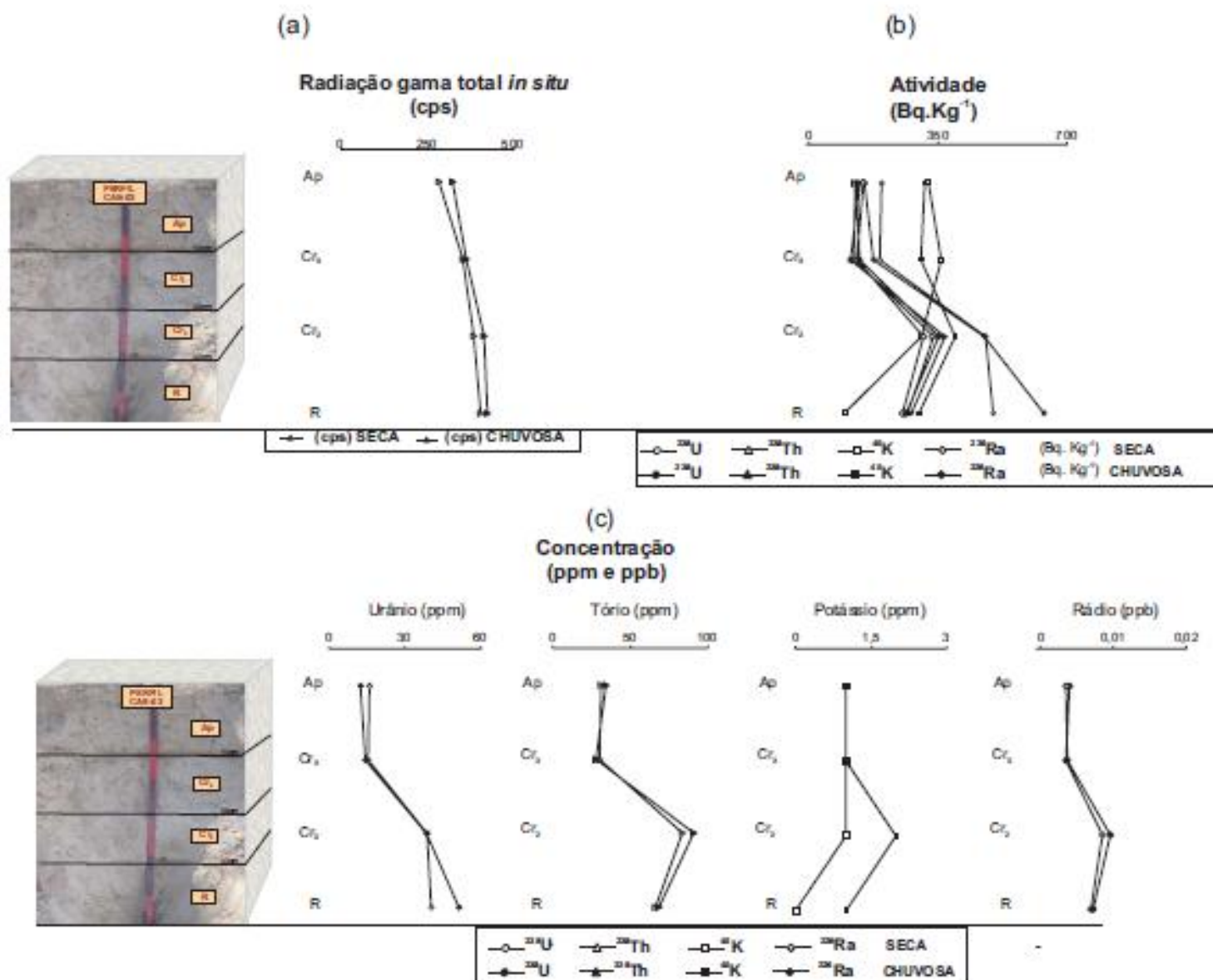


Figura 4.22: Radiação gama total *in situ* (a), atividade específica (b) e concentração (c) dos radionuclídeos no perfil CAE-03 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB).

Figura 4.23: Radiação gama total *in situ* (a), atividade específica (b) e concentração (c) dos radionuclídeos no perfil CAE-04 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB).

Figura 4.24: Radiação gama total *in situ* (a), atividade específica (b) e concentração (c) dos radionuclídeos no perfil CAE-05 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB).

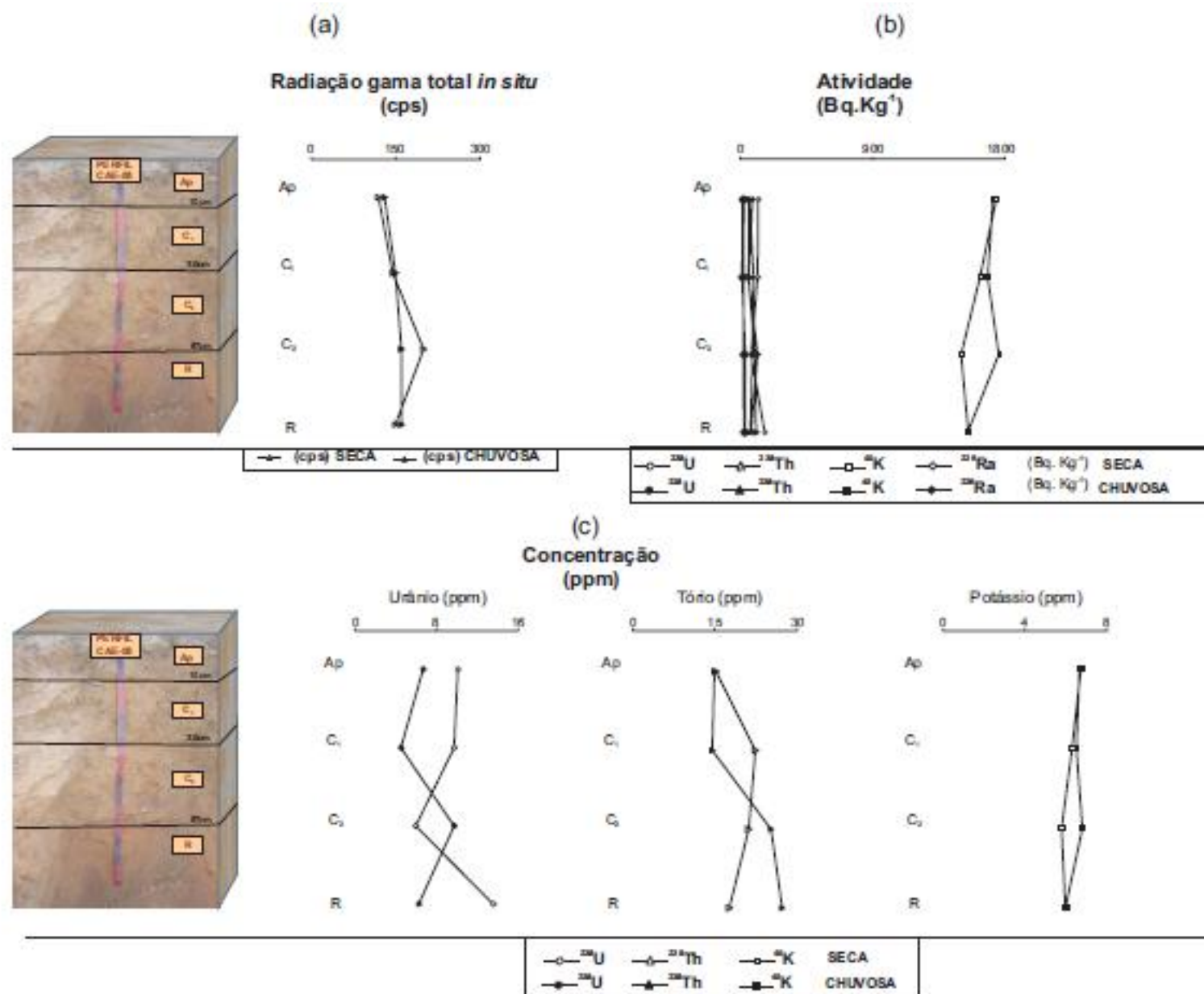


Figura 4.25: Radiação gama total *in situ* (a), atividade específica (b) e concentração (c) dos radionuclídeos no perfil CAE-06 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB).

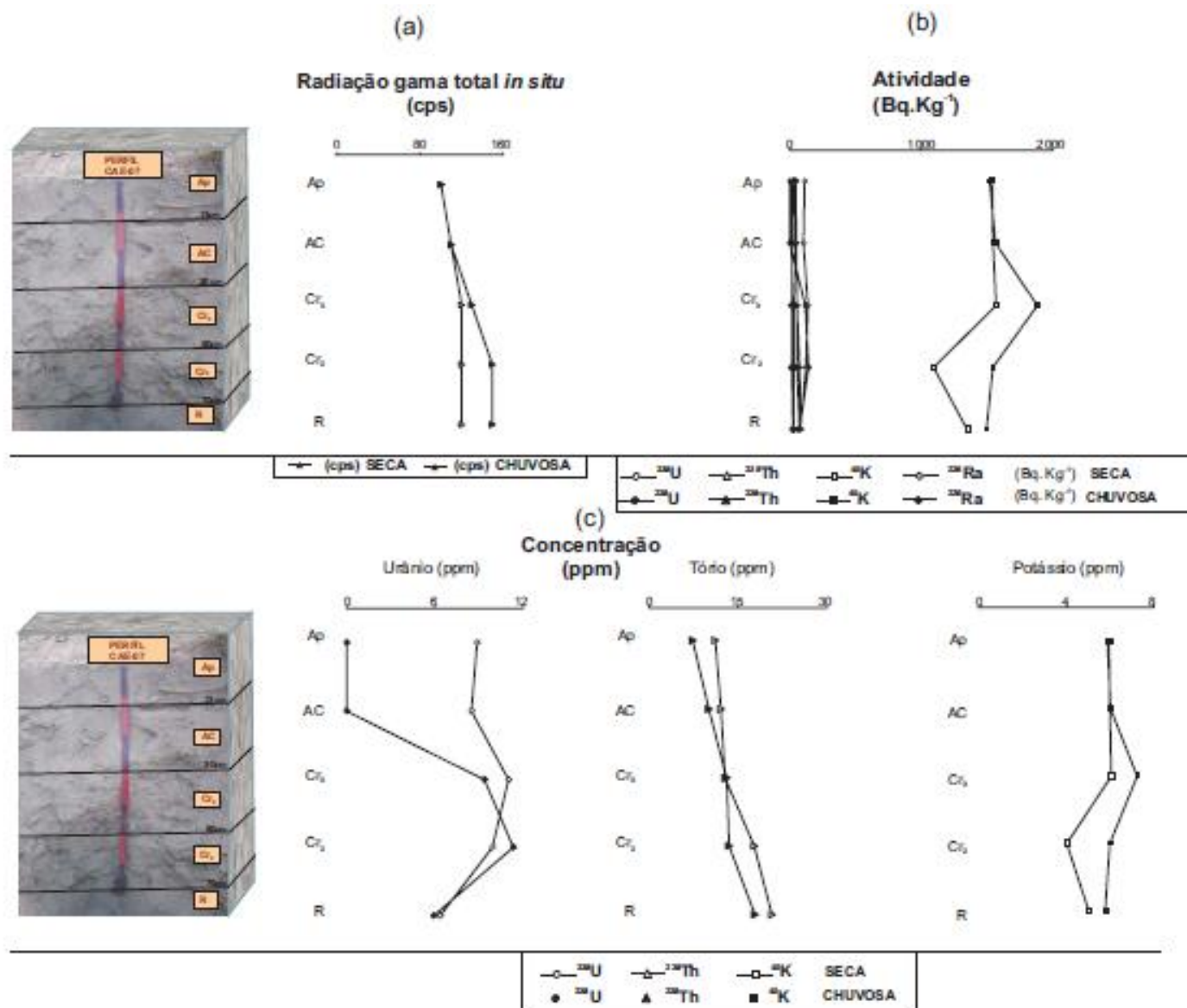


Figura 4.26: Radiação gama total *in situ* (a), atividade específica (b) e concentração (c) dos radionuclídeos no perfil CAE-07 da área de mineralização de U de São José de Espinharas (PB).

Tabela 4.5: Valores da Radiação Gama Total *in situ* das amostras de solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIS	AMOSTRAS	RADIAÇÃO GAMA TOTAL <i>IN SITU</i> (cps)	
		Seca	Chuvosa
CAE-01	Ap	550	800
	RCr	600	1000
	R	1200	1100
CAE-02	Ap	4800	6000
	Cr ₃	5200	6000
	Cr ₂	7000	7000
	R	7000	7500
CAE-03	Ap	280	320
	Cr ₃	350	360
	Cr ₂	380	410
	R	400	420
CAE-04	Ap	150	150
	A	150	170
	Cr ₂	180	190
	R	190	200
CAE-05	Ap	200	250
	AC	220	270
	CrR	280	290
	R	550	500
CAE-06	Ap	120	130
	C ₁	145	150
	C ₂	200	160
	R	150	160
CAE-07	Ap	100	100
	AC	110	110
	Cr ₃	120	130
	Cr ₂	120	150
	R	120	150

4.5.2 Atividade Específica dos Radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn nas Amostras de Solo e Rocha

A curva de eficiência (Figura 4.27) do equipamento Espectrômetro com Detector de Germânio Hiperpuro (HPGe) para as energias entre 63keV e 1.408KeV foi determinada experimentalmente a partir do procedimento descrito no Capítulo 3, item 3.4.3.1.

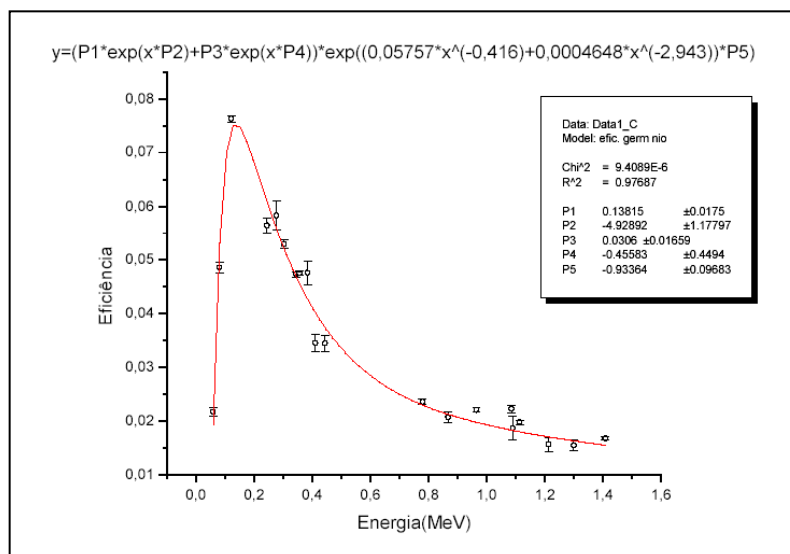


Figura 4.27: Curva de eficiência do equipamento HPGe.

A partir do espectro de calibração (Figura 4.28) dos padrões utilizados, foram determinadas as atividades dos radionuclídeos estudados e suas respectivas concentrações nas amostras.

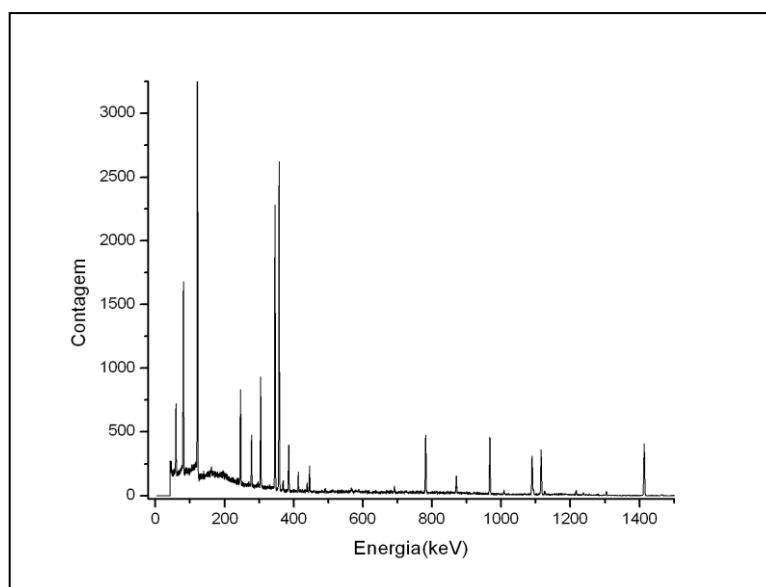


Figura 4.28: Espectro de calibração.

Para a determinação da atividade específica de cada radionuclídeo considerado (Bq.kg^{-1}) utilizou-se a seguinte equação abaixo (Tzortzis *et al.*, 2003):

$$A = \frac{C}{\varepsilon \cdot t \cdot I_{\gamma} \cdot M}$$

Onde: **A** é a atividade específica do radionuclídeo em consideração (Bq. Kg^{-1});
C é a área total do pico do radionuclídeo (contagem) determinada experimentalmente;
 ε é a eficiência de contagem para a energia específica considerada;
t é o tempo de contagem (s);
 I_{γ} é a probabilidade de emissão de fótons do radionuclídeo específico;
M é a massa da amostra em quilograma (Kg).

Os limites de detecção para as energias entre 63 e 1.460KeV foram calculadas através da equação, abaixo (Silva & Mazzilli, 2005):

$$LD = \frac{4,66\sqrt{C}}{\varepsilon \cdot I_{\gamma} \cdot M \cdot t}$$

Onde: **4,66** é uma constante para um limite de confiança de 95%;
C é a área total do pico do radionuclídeo (contagem) determinada experimentalmente;
 ε é a eficiência de contagem para a energia específica considerada;
 I_{γ} é a probabilidade de emissão de fótons do radionuclídeo específico;
M é a massa da amostra em quilograma (Kg).
t é o tempo de contagem (s);

A partir dos parâmetros descritos acima, foram calculados os limites de detecção do equipamento para as energias em consideração (Tabela 4.6).

Tabela 4.6: Limites de detecção (LD) das atividades do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra .

RADIONUCLÍDEO	ENERGIA (KeV)	LD (Bq.Kg ⁻¹)
^{238}U	63	0,02
^{232}Th	911	0,00
^{40}K	1.460	0,03
^{226}Ra	609	0,00

Nas Figuras 4.20 a 4.26 (b) citadas anteriormente, pode-se verificar a distribuição das Atividades Específica dos radionuclídeos analisados (^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn) nas amostras dos perfis rocha-solo. Ressalta-se que os resultados referentes à atividade específica do ^{222}Rn nas amostras analisadas são equivalentes à atividade específica do ^{226}Ra , uma vez que o ^{222}Rn atinge o equilíbrio radioativo com o seu progenitor o ^{226}Ra , após cerca de 25 dias (Bonotto, 2004), e as amostras analisadas ficaram armazenadas em potes hermeticamente fechados por um período de 60 dias, o que possibilitou o equilíbrio radioativo entre estes radionuclídeos.

Através da razão entre as atividades de $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ e $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, pode-se verificar qual elemento está sendo preferencialmente lixiviado e inferir sobre a condição de equilíbrio radioativo do sistema (Adams & Weaver, 1958; Holleman & Wiberg, 1960; Ivanovich & Harmon, 1992).

Na Tabela 4.7, pode-se verificar as atividades específicas dos radionuclídeos estudados e as razões entre as atividades $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ e $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ encontradas em todos os perfis rocha-solo.

No presente estudo, verifica-se que os valores referentes à razão $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ em todos os perfis rocha-solo estudados, em ambas as estações climáticas (seca e chuvosa), foram menores que 2. Estes valores sugerem um relativo enriquecimento do meio em urânio em relação ao ^{232}Th (Adams & Weaver, 1958). Isto pode ser explicado pelo fato de que em todos os perfis rocha-solo estudados, a condição geoquímica é provavelmente oxidante, resultante da combinação das condições climáticas locais (semi-aridez) com a textura arenosa dos solos estudados. E, em ambiente superficial oxidante, em geral o Th^{+4} permanece inalterado e imóvel enquanto o U^{+4} oxida-se a U^{+6} , formando o íon uranila (UO_2^{2+}), o que lhe confere uma grande mobilidade geoquímica em tal ambiente (Bowie & Plant, 1983; Weidjen & Weidjen, 1995; Rebelo *et al.*, 2002; Becegato & Ferreira, 2005).

Em relação à razão de atividade de $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, verifica-se, no presente estudo, que apenas o horizonte Ap e a rocha, ambos do Perfil CAE-01, nas duas estações climáticas consideradas, além das rochas dos Perfis CAE-02 e CAE-05, na estação seca, apresentaram a razão de atividade de $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} \geq 1$, o que indica uma maior concentração de ^{226}Ra em relação ao ^{238}U . No entanto, na maioria dos horizontes dos solos e das rochas estudadas, predominou a razão de atividade de $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U} < 1$, indicando que ocorreu uma maior solubilidade e mobilidade do ^{226}Ra em relação ao ^{238}U , e, conseqüentemente, uma maior concentração do ^{238}U em relação ao ^{226}Ra na maioria dos horizontes dos solos e da rocha, o que foi comprovado no estudo da mobilidade dos radionuclídeos nos perfis rocha-solo (Item 4.7)

Tabela 4.7: Atividades específicas do ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn e as razões $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ e $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIS	AMOSTRA	^{238}U		^{232}Th		^{40}K		^{226}Ra		^{222}Rn		RAZÃO			
		(Bq.Kg ⁻¹)		(Bq.Kg ⁻¹)		(Bq.Kg ⁻¹)		(Bq.Kg ⁻¹)		(Bq.Kg ⁻¹)		$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$		$^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$	
		SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA
CAE-01	Ap	289	286	286	295	652	418	487	505	487	505	1,7	1,8	1,0	1,0
	RCr	1079	1484	752	749	311	397	894	893	894	893	0,8	0,6	0,7	0,5
	R	893	938	604	446	440	470	1046	1049	1046	1049	1,2	1,1	0,7	0,5
CAE-02	Ap	4056	5006	5774	6009	822	795	2593	2865	2593	2865	0,6	0,6	1,4	1,2
	CR ₃	7114	5561	7373	7078	904	795	3663	3982	3663	3982	0,5	0,7	1,0	1,3
	Cr ₂	7452	5469	8402	7071	844	895	4063	3825	4063	3825	0,5	0,7	1,1	1,3
	R	2691	4528	3134	6260	313	570	2838	3147	2838	3147	1,1	0,7	1,2	1,4
CAE-03	Ap	197	152	125	139	325	315	148	130	148	130	0,7	0,9	0,6	0,9
	Cr ₃	192	176	123	113	359	305	130	137	130	137	0,7	0,8	0,6	0,6
	Cr ₂	480	477	339	369	306	398	312	353	312	353	0,6	0,7	0,7	0,8
	R	501	638	269	278	96	300	255	265	255	265	0,5	0,4	0,5	0,4
CAE-04	Ap	106	105	105	88	1423	1374	53	29	53	29	0,5	0,3	1,0	0,8
	A	104	67	103	99	1529	1434	44	39	44	39	0,4	0,6	1,0	1,5
	Cr ₂	133	213	84	95	1415	1619	59	70	59	70	0,4	0,3	0,6	0,4
	R	144	130	90	85	1390	1628	62	59	62	59	0,4	0,5	0,6	0,7
CAE-05	Ap	371	202	118	104	494	524	135	151	135	151	0,4	0,7	0,3	0,5
	AC	429	206	104	100	476	429	159	181	159	181	0,4	0,9	0,2	0,5
	CrR	388	225	77	107	131	125	284	156	284	156	0,7	0,7	0,2	0,5
	R	475	464	72	50	261	285	498	442	498	442	1,0	1,0	0,2	0,1
CAE-06	Ap	125	83	62	61	1744	1721	25	19	25	19	0,2	0,2	0,5	0,7
	C ₁	120	56	91	59	1632	1687	23	14	23	14	0,2	0,2	0,8	1,1
	C ₂	74	121	86	103	1505	1759	20	36	20	36	0,3	0,3	1,2	0,8
	R	168	77	72	111	1551	1547	25	34	25	34	0,1	0,4	0,4	1,4
CAE-07	Ap	111	0	45	30	1541	1520	18	11	18	11	0,2	-	0,4	-
	AC	105	0	50	41	1546	1562	17	10	17	10	0,2	-	0,5	-!
	Cr ₃	137	116	52	53	1571	1880	16	30	16	30	0,1	0,3	0,4	0,5
	Cr ₂	123	141	72	55	1091	1545	15	27	15	27	0,1	0,2	0,6	0,4
	R	79	74	84	72	1350	1493	24	30	24	30	0,3	0,4	1,1	1,0

Em relação ao ^{40}K , pode-se verificar que no perfis rocha-solo CAE-04, CAE-06 e CAE-07, os valores da atividade de ^{40}K são superiores aos valores da atividade do ^{238}U , ^{232}Th e ^{226}Ra . Provavelmente, isto está relacionado à ocorrência do argilomineral illita ($(\text{K}_{1-1,5}\text{Al}_4(\text{Si}_{6,5-7}\text{Al}_{1-1,5}\text{O}_{20})(\text{OH})_4)$ detectados pelas análises DRX apenas nestes perfis (Item 4.2.1). Este argilomineral, não expansível, do tipo 2: 1 é formado por duas camadas tetraédricas de sílica contendo no meio uma camada octaédrica de alumina (Brady, 1979) e, possui a propriedade de fixar o K entre essas camadas (Besoain, 1985).

Os maiores valores encontrados no presente estudo relativos à atividade de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra em solo foram 7.452, 8.402, 1.880 e 4.063 Bq.Kg $^{-1}$, respectivamente. Estes valores são superiores à média mundial para atividades destes elementos no solo, que correspondem a 25, 28, 400 e 26 Bq.Kg $^{-1}$, para ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e ^{226}Ra , respectivamente (Malanca *et al.*, 1993; AECB, 1995).

Comparando-se os valores da atividade do ^{238}U encontrados no presente estudo e aqueles encontrados em solos de áreas de algumas regiões do Globo (naturais, sem influência antropogênica) (Tabela 4.8), verifica-se que os valores encontrados nas amostras de solo de São José de Espinharas (PB), especialmente dos perfis Neossolo Litólico - Sienogranito albitizado (CAE-01 e CAE-02), são superiores a todos estes valores. Salienta-se, no entanto, que, das áreas que constam na Tabela 4.8, apenas os solos do município de Pedra (PE) estão localizados em uma área de clima semi-árido, semelhante ao da área do presente estudo. E, que apenas os solos do Estado de Chihuahua (México), estão localizados em um depósito de U semelhante à área investigada neste trabalho.

Tabela 4.8: Valores da atividade de ^{238}U em solos da área de São José de Espinharas (PB) e de diversas outras localidades no Globo.

LOCAL	ATIVIDADE DE ^{238}U	
	(Bq. Kg $^{-1}$)	REFERÊNCIA DO ESTUDO
São José de Espinharas, Paraíba, Brasil	0 – 7.452	Presente estudo
Pedra, Pernambuco, Brasil	21,6 – 268,1	Santos Júnior, 2005
Ajka, Hungria	33 – 944	Papp <i>et al.</i> , 1997
China	20 – 520	Kannan <i>et al.</i> , 2002
Espanha	8 – 310	Kannan <i>et al.</i> , 2002
Estados Unidos	9 – 1.558	Kannan <i>et al.</i> , 2002
Gadalore, Índia	16,7 – 62,4	Selvasekarapandian <i>et al.</i> , 1999
Kalpakkam, Índia	5 – 71	Kannan <i>et al.</i> , 2002
Udagamandalam, Índia	0 – 87,5	Selvasekarapandian <i>et al.</i> , 1999
Trípoli, Líbano	8,7 – 12,8	Shenber, 1997
Venezuela	15 - 37	Kannan <i>et al.</i> , 2002
Chihuahua, México	46,6 – 460,5	Sujo <i>et al.</i> , 2004

4.5.3 Concentração dos Radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn nas Amostras de Solo e Rocha

A concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn foi calculada a partir do procedimento descrito no capítulo 3, item 3.4.3.2.

Nas figuras 4.20 a 4.26 (c), anteriormente citadas, pode-se verificar a distribuição das concentrações dos radionuclídeos analisados (^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn) nas amostras dos perfis rocha-solo. Os resultados referentes à concentração do ^{222}Rn nas amostras analisadas são equivalentes à concentração do ^{226}Ra , pela mesma razão daquela exposta no item 4.5.2.

As concentrações dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K nos perfis rocha-solo estudados correspondem a 0-599 ppm, 7-2.070 ppm e 0-7%, respectivamente (Tabela 4.9). Estes valores são superiores àqueles encontrados nos solos da mina de urânio Mary Kathleen localizada no semi-árido de Queensland (Austrália) e que correspondem a 27-110 ppm de ^{238}U , 25-210 ppm de ^{232}Th e 0,88-3,22% de ^{40}K (Lottermoser *et al.*, 2005). Sendo, os valores de concentração de ^{238}U do presente estudo, também superiores àqueles reportados para solos da Província Uranífera Lagoa Real (BA) e que correspondem a 8,2-13,1 ppm de ^{238}U (Oliveira, 2006). Isto torna o caso de São José de Espinharas um destaque no cenário nacional, e mesmo internacional, no tocante ao estudo da avaliação da dose natural de radiação.

No presente estudo, verifica-se que, excetuando-se o horizonte C1 do Perfil CAE-06, e os horizontes Ap e AC do perfil CAE-07, todos na estação chuvosa, os horizontes do solo de todos os perfis rocha-solo amostrados apresentam, na estação seca e chuvosa, uma concentração ^{238}U acima dos valores médios reportados para solos do Globo (1 a 5 mg.kg⁻¹) (Bowie & Plant, 1983). Estes solos investigados em São José de Espinharas são autóctones e relativamente jovens, portanto, refletem características do material de origem (Oliveira, 2005). Dessa forma, o conteúdo de ^{238}U dos solos, provavelmente está relacionado ao conteúdo das suas respectivas rochas matrizes, que no caso do presente estudo, é relativamente alta, mesmo nos perfis que foram desenvolvidos sobre as rochas que não são mineralizadas em urânio, como é o caso dos perfis CAE-04, CAE-06 e CAE-07. É importante ressaltar, ainda, que durante os processos de intemperismo, os radionuclídeos são liberados da rocha, redistribuídos e incorporados ao solo, que por sua vez pode apresentar concentrações em radionuclídeos diferentes daquelas da rocha original devido à reorganização textural e geoquímica que ocorre no perfil intemperizado (Wilford *et al.*, 1997).

No ambiente superficial, o ^{238}U representa 99,3% do urânio total e o ^{232}Th corresponde a 100% do tório total (Wilford *et al.*, 1997).

A concentração de ^{232}Th , na maioria dos perfis estudados, foi relativamente maiores que a concentração do ^{238}U . Provavelmente, este resultado está atrelado ao fato de que, os solos estudados estão sujeitos aos processos pedogenéticos (adição, perdas, transformações, transporte no interior do perfil e remanejamentos mecânicos) (Simonson, 1959) e, à medida que estes processos ocorrem, há uma tendência para maior fixação, principalmente nos horizontes mais superficiais, do ^{232}Th , que é um elemento com relativa menor mobilidade que o ^{238}U (Rosholt *et al.*, 1966; Langmuir & Herman, 1980).

Considerando o perfil rocha-solo CAE-02, que é o que possui maiores concentrações em ^{238}U e ^{232}Th , verifica-se que as concentrações destes radionuclídeos são maiores nos solos do que nas rochas. Isto indica que é possível que esteja ocorrendo transferência vertical de ^{238}U e ^{232}Th . O urânio é lixiviado em profundidade nos perfis de solo e tende a se concentrar nos horizontes superiores, o que determina que as concentrações de urânio são tanto mais elevadas quanto maior é a distância vertical da rocha mãe. No entanto, esta "acumulação" é aparente uma vez que ela provém, principalmente, da fixação nos argilominerais do urânio residual (e não lixiviado) proveniente da rocha mãe. À alteração da rocha segue-se uma perda de matéria que é lixiviada, e o urânio residual não solubilizado tende a se "acumular" no solo. Assim, concentrações relativamente mais elevadas de urânio podem ser encontradas no topo dos perfis de solo sem dúvida, graças à presença dos argilominerais de alteração (Rosholt *et al.*, 1966), que na área de São José de Espinharas é predominantemente do tipo 2:1, e correspondem à montmorilonita ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot n\text{H}_2\text{O}$) e Illita ($\text{K}_{1-1,5}\text{Al}_4(\text{Si}_{7-6,5}\text{Al}_{1-1,5}\text{O}_{20})(\text{OH})_4$) (reconhecidamente bons retentores para elementos químicos (Fassbender & Bornemisza, 1987)).

Em contrapartida, o ^{233}Th é solubilizado somente em condições muito específicas de pH (> 3) e na presença de agentes complexantes (Langmuir & Herman, 1980) sendo sua mobilidade não apenas controlada por complexos solúveis mas, também, por estruturas sólidas, tais como minerais transformados ou neoformados, amorfos ou coloidal, incluindo óxidos e hidróxidos de Fe (Short *et al.*, 1989). Dessa forma, sua baixa solubilidade é a principal responsável pelo enriquecimento em Th dos solos.

Considerando as concentrações de ^{226}Ra , equivalentes a 0 e 0,11ppb (Tabela 4.9) no solo, pode-se verificar que são concentrações extremamente baixas, quando comparadas com as concentrações de ^{238}U e ^{232}Th . Contudo, essas concentrações são consideradas altas quando comparadas com o valor médio normalmente encontrados em solos (média do Globo) que é equivalente a 0,0008 ppb (Rose *et al.*, 1979). Dessa maneira, valores na ordem de "ppb" são naturalmente encontrados em solos de áreas com elevada radioatividade natural (Arafa, 2004), como é o caso da área estudada, e em minérios que contêm urânio e tório (Gonsalves, 1959).

Em relação ao ^{40}K , sua concentração é expressa em % devido à sua relativa elevada concentração em relação aos radionuclídeos ^{238}U e ^{232}Th . O ^{40}K representa apenas 0,012% do K total, e é uma fonte de radiação muito mais discreta do que as séries de U e Th, mas devido à sua abundância na crosta (2%), sua contribuição ao fluxo de radiação natural é considerada como equivalente aos das séries mencionadas (Wilford *et al.*, 1997).

Os resultados obtidos na presente pesquisa indicam que as maiores concentrações de ^{40}K podem ser verificadas, principalmente nos perfis CAE-04 (Neossolo Litólico – Sienogranito), CAE-06 (Neossolo Regolítico-Augen Gnaiss) e CAE-07 (Neossolo Regolítico-Granodiorito), ou seja, nos perfis cuja rocha não é enriquecida em ^{238}U . Provavelmente esta elevada concentração em ^{40}K destes perfis, está relacionada à maior atividade deste radionuclídeo nos perfis considerados, o que possivelmente é explicado pela presença do argilomineral illita ($(\text{K}_{1-1,5} \text{Al}_4(\text{Si}_{6,5} - 7\text{Al}_{1-1,5}\text{O}_{20})(\text{OH})_4)$), detectado através da análise mineralógica por DRX. Este mineral por sua vez possui a propriedade de fixar o K entre suas camadas tetraédricas de sílica e octaédrica de alumina (Besoain, 1985).

Tabela 4.9: Concentração de ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn das amostras de solo e rocha da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIS	AMOSTRA	^{238}U		^{232}Th		^{40}K		^{226}Ra		^{222}Rn	
		(ppm)		(ppm)		(%)		(ppb)		(ppb)	
		SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA	SECA	CHUVOSA
CAE-01	Ap	23	23	70	73	2,5	1,6	0,01	0,01	0,01	0,01
	RCr	87	119	185	184	1,2	1,5	0,02	0,02	0,02	0,02
	R	72	75	149	110	1,7	1,8	0,03	0,03	0,03	0,03
CAE-02	Ap	326	402	1422	1480	3,2	3,1	0,07	0,08	0,07	0,08
	Cr ₃	572	447	1816	1744	3,5	3,1	0,10	0,11	0,10	0,11
	Cr ₂	599	439	2070	1742	3,3	3,5	0,11	0,10	0,11	0,10
	R	216	364	772	1542	1,2	2,2	0,08	0,09	0,08	0,09
CAE-03	Ap	16	12	31	34	1,3	1,2	0,00	0,00	0,00	0,00
	Cr ₃	15	14	30	28	1,4	1,2	0,00	0,00	0,00	0,00
	Cr ₂	39	38	83	91	1,2	1,5	0,01	0,01	0,01	0,01
	R	40	51	66	68	0,4	1,2	0,01	0,01	0,01	0,01
CAE-04	Ap	9	8	26	22	5,5	5,3	0,00	0,00	0,00	0,00
	A	8	5	25	24	5,9	5,5	0,00	0,00	0,00	0,00
	Cr ₂	11	17	21	23	5,5	6,2	0,00	0,00	0,00	0,00
	R	12	10	22	21	5,4	6,3	0,00	0,00	0,00	0,00
CAE-05	Ap	30	16	29	26	1,9	2,0	0,00	0,00	0,00	0,00
	AC	35	17	26	25	1,8	1,7	0,00	0,00	0,00	0,00
	CrR	31	18	19	26	0,5	0,5	0,01	0,00	0,01	0,00
	R	38	37	18	12	1,0	1,1	0,01	0,01	0,01	0,01
CAE-06	Ap	10	7	15	15	6,7	6,6	0,00	0,00	0,00	0,00
	C ₁	10	4	22	14	6,3	6,5	0,00	0,00	0,00	0,00
	C ₂	6	10	21	25	5,8	6,8	0,00	0,00	0,00	0,00
	R	14	6	18	27	6,0	6,0	0,00	0,00	0,00	0,00
CAE-07	Ap	9	0	11	7	5,9	5,9	0,00	0,00	0,00	0,00
	AC	8	0	12	10	6,0	6,0	0,00	0,00	0,00	0,00
	Cr ₃	11	9	13	13	6,1	7,3	0,00	0,00	0,00	0,00
	Cr ₂	10	11	18	14	4,0	6,0	0,00	0,00	0,00	0,00
	R	6	6	21	18	5,0	5,8	0,00	0,00	0,00	0,00

4.6 ANÁLISE DE CORRELAÇÃO

Os resultados das análises de todas as amostras de solo e rocha desta pesquisa quanto a todos os parâmetros físico-químicos (profundidade, granulometria, porosidade total, umidade, matéria orgânica, carbonatos totais e pH), geoquímicos (concentração de Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Pb, Cu) e radiométricos (radiação gama *in situ*; atividade específica e concentração dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra , ^{222}Rn) foram correlacionados entre si, através de uma matriz de correlação envolvendo o cálculo dos coeficientes de correlação de Pearson (Tabela 4.10). Conforme informado no Capítulo 3, item 3.5, considerou-se neste tratamento estatístico que: para os valores abaixo do limite de detecção os mesmos seriam equivalentes à metade deste limite e, como correlação significativa todos os valores dos coeficientes de correlação de Pearson (r) superiores a 0,8 (valor absoluto), tanto positivo quanto negativo.

Os resultados da matriz de correlação não revelaram nenhuma correlação significativa importante entre todos os parâmetros analíticos envolvidos. Apenas indicaram correlações óbvias entre os parâmetros abaixo:

- ✓ Os teores da fração granulométrica silte estão negativamente correlacionadas ($r = -0,8$) com os teores da fração areia, e os teores da fração argila também estão negativamente correlacionados ($r = -0,9$) com os teores da fração areia;
- ✓ As atividades específicas dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra e ^{222}Rn estão correlacionadas positivamente com as suas respectivas concentrações ($r = 1,0$) e com a radiação gama emitida *in situ* ($r = 1,0$). Isto é esperado porque as atividades destes radionuclídeos são proporcionais às concentrações dos mesmos.

Vale salientar que também foram feitas matrizes de correlação considerando os resultados de todos os parâmetros acima descritos considerando duas situações:

- Envolvendo apenas as amostras de solo, e
- Envolvendo apenas as amostras de rocha.

Os resultados destas matrizes de correlação também não revelaram nenhuma correlação significativa importante entre todos os parâmetros analíticos envolvidos. Por esta razão optou-se por se apresentar apenas a matriz de correlação envolvendo todos os parâmetros analíticos e todas as amostras (Figura 4.10).

Tabela 4.10: Matriz de correlação mostrando os coeficientes de correlação (r) entre todos os parâmetros estudados, e considerando-se todos os perfis rocha-solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PARÂMETROS	Profundidade	Areia	Silte	Argila	Poros.	Umid.	Mat.Org.	Carbon.	pH	Gama t.	Ativ. U	Ativ. Th	Ativ. K	Ativ. Ra	Ativ. Rn	Conc. U	Conc. Th	Conc. K	Conc. Ra	Conc. Rn	Al	Cd	Co	Cu	Fe	Mn	Ni	Pb
Profundidade	1,0																											
Areia	-0,1	1,0																										
Silte	-0,2	-0,8	1,0																									
Argila	0,2	-0,9	0,5	1,0																								
Porosidade	0,0	-0,2	-0,1	0,3	1,0																							
Umidade	0,0	-0,1	0,1	0,1	0,1	1,0																						
Matéria orgânica	-0,6	0,2	0,1	-0,3	-0,3	0,0	1,0																					
Carbonatos	-0,3	-0,1	0,3	0,1	-0,1	0,1	0,1	1,0																				
pH	0,2	0,3	-0,3	-0,2	0,3	0,1	-0,1	-0,3	1,0																			
Gama total in situ	0,0	-0,2	0,2	0,1	-0,2	-0,2	-0,1	0,3	0,2	1,0																		
Atividade U	-0,1	-0,1	0,2	0,1	0,3	0,0	-0,1	0,2	0,2	0,9	1,0																	
Atividade Th	-0,1	-0,1	0,2	0,1	0,2	0,0	-0,1	0,2	0,2	1,0	1,0	1,0																
Atividade K	0,1	-0,2	0,1	0,2	-0,3	-0,3	0,1	-0,4	-0,4	-0,2	-0,2	-0,2	1,0															
Atividade Ra	-0,1	-0,2	0,2	0,1	0,3	0,1	-0,1	0,3	0,2	1,0	1,0	1,0	-0,3	1,0														
Atividade Rn	-0,1	-0,2	0,2	0,1	0,3	0,1	-0,1	0,3	0,2	1,0	1,0	1,0	-0,3	1,0	1,0													
Concentração U	-0,1	-0,1	0,2	0,1	0,3	0,0	-0,1	0,2	0,2	0,9	1,0	1,0	-0,2	1,0	1,0	1,0												
Concentração Th	-0,1	-0,1	0,2	0,1	0,2	0,0	-0,1	0,2	0,2	1,0	1,0	1,0	-0,2	1,0	1,0	1,0	1,0											
Concentração K	0,1	-0,2	0,1	0,2	-0,3	-0,3	0,1	-0,4	-0,4	-0,2	-0,2	-0,2	1,0	-0,3	-0,1	-0,2	-0,2	1,0										
Concentração Ra	-0,1	-0,2	0,2	0,1	0,3	0,1	-0,1	0,3	0,2	1,0	1,0	1,0	-0,3	1,0	1,0	1,0	1,0	-0,3	1,0									
Concentração Rn	-0,1	-0,2	0,2	0,1	0,3	0,1	-0,1	0,3	0,2	1,0	1,0	1,0	-0,3	1,0	1,0	1,0	1,0	-0,3	1,0	1,0								
Al	0,1	-0,4	0,4	0,3	0,2	0,1	-0,2	0,3	0,1	0,6	0,5	0,5	-0,2	0,6	0,6	0,5	0,5	-0,2	0,6	0,3	1,0							
Cd	-0,1	-0,4	0,4	0,3	0,1	0,1	0,1	0,1	-0,1	-0,2	-0,2	-0,2	-0,2	-0,2	0,1	-0,2	-0,2	-0,2	-0,2	0,1	0,1	1,0						
Co	-0,1	-0,3	0,3	0,2	0,1	0,2	0,2	0,1	-0,1	-0,1	-0,1	-0,1	-0,1	0,0	0,0	-0,1	-0,1	-0,1	0,0	0,0	0,3	0,4	1,0					
Cu	-0,1	-0,1	-0,1	0,2	0,1	0,1	0,1	-0,2	0,3	-0,1	-0,1	-0,1	0,0	-0,1	0,0	-0,1	-0,1	-0,1	-0,1	0,0	0,1	0,5	0,3	1,0				
Fe	0,1	0,2	-0,2	-0,2	0,1	0,0	0,0	0,2	0,2	0,5	0,4	0,4	-0,3	0,5	0,5	0,4	0,4	0,0	-0,1	0,0	0,1	0,5	0,3	1,0	1,0			
Mn	-0,2	-0,2	0,3	0,2	0,2	0,1	0,3	0,0	-0,1	0,2	0,3	0,2	0,0	0,3	0,2	0,3	0,2	0,0	0,3	0,2	0,3	0,4	0,5	0,3	0,0	1,0		
Ni	-0,1	-0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,2	0,0	0,3	0,0	0,0	0,0	-0,2	0,0	0,0	0,0	0,0	-0,2	0,0	0,0	0,2	0,5	0,5	0,6	0,1	0,4	1,0	
Pb	-0,2	-0,4	0,6	0,2	-0,1	-0,2	0,1	0,1	-0,4	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,1	-0,1	-0,1	0,2	0,1	1,0

Abreviações: Poros. = Porosidade; Umid.= Umidade; Mat. Org.= Matéria Orgânica; Carbon.= Carbonatos; Gama t = Gama total *in situ*; Ativ. U= Atividade do ²³⁸U; Ativ.Th = Atividade do ²³²Th; Ativ.K = Atividade do ⁴⁰K; Ativ.Ra = Atividade do ²²⁶Ra; Ativ.Rn = Atividade do ²²²Rn; Conc.U = Concentração de ²³⁸U; Conc.Th= Concentração de ²³²Th; Conc.Ra = Concentração de ²²⁶Ra; Conc.Rn = Concentração de ²²²Rn)

4.7 ESTUDO DA MOBILIDADE DOS RADIONUCLÍDEOS E METAIS PESADOS INVESTIGADOS NOS PERFIS ROCHA-SOLO

Neste item, a análise da mobilidade relativa dos radionuclídeos e metais pesados enfocados no presente estudo é tratada considerando-se duas condições: (i) “status” da formação do solo e (ii) “sazonal” no solo já formado. Esta análise será feita através dos diagramas ISOCON (Grant, 1986), cuja metodologia está descrita no Capítulo 3, item 3.5. Para construção dos referidos diagramas, alguns valores de concentração foram multiplicados por um determinado valor, a fim de ajustá-los à escala e comportar todos os parâmetros em um mesmo diagrama. Para o balanço químico escolheu-se a reta ISOCON do Al a fim de se fazer inferências com relação às variações químicas em cada um dos horizontes dos solos estudados, uma vez que o Al é um elemento considerado imóvel no sistema considerado (Wedepohl, 1969).

Vale salientar que as observações realizadas a partir dos diagramas ISOCON serão feitas em diagramas seqüenciados na ordem do sentido vertical, de baixo para cima, ou seja, da rocha para o horizonte mais superficial (Ap), quando considerada a condição de determinação do “status” do solo. Isto se deve ao entendimento de que os processos de intemperismo que levam à formação de solos autóctones ocorrem no sentido da rocha para o solo. Já quando considerada a condição de mobilidade sazonal dos elementos no solo, esta análise será feita em diagramas seqüenciados na ordem do sentido vertical de cima para baixo, ou seja, do horizonte superficial Ap para os horizontes subsuperficiais (AC, C1, C2, RCr e CrR), uma vez que os processos a serem considerados para avaliar a mobilidade dos elementos no solo, neste contexto, é a eluviação, iluviação (processos de perda e adição de material, respectivamente) e lixiviação (remoção de sais solúveis), resultantes da entrada de água no sistema por ocasião da estação chuvosa, os quais atuam verticalmente de cima para baixo.

As análises para definição do “status” do solo e para avaliação da mobilidade dos elementos serão feitas considerando os perfis que têm como material de origem a mesma rocha. Desta forma, serão analisados conjuntamente os perfis rocha-solo constituídos por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado (perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05), e, analisados separadamente os perfis rocha-solo constituídos por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito (CAE-04), Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss (CAE-06) e Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito (CAE-07).

Um outro aspecto importante a ser ressaltado é que os conteúdos de radionuclídeos enfocados neste estudo são especificamente relacionados aos isótopos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K ,

^{226}Ra e ^{222}Rn . E, que os resultados referentes aos radionuclídeos ^{226}Ra e ^{222}Rn , são semelhantes, uma vez que considerou-se neste estudo, que estes radionuclídeos estão em equilíbrio radioativo. E, ainda que o conteúdo dos metais pesados Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb, são aqueles que constituem apenas a fração biodisponível.

Além dos diagramas ISOCON, na interpretação dos processos de mobilidade serão considerados os aspectos físico-químicos do solo (profundidade, pH, conteúdo de argila, matéria orgânica e carbonatos totais) de forma a contextualizar as análises.

4.7.1 Mobilidade de Radionuclídeos e de Metais Pesados para as Condições do “Status” da Formação do Solo

Na denominação dos horizontes do solo e das rochas que compõem os perfis rocha-solo estudados foi acrescentado “(s)” em subscrito, a fim de identificá-los quanto à estação climática (seca), na qual foram coletadas as amostras para se avaliar a mobilidade para as condições do “Status” da formação do solo.

A fim de facilitar a compreensão de como ocorre a distribuição dos horizontes superficiais e subsuperficiais (no sentido vertical de cima para baixo) em todos os perfis rocha-solo estudados foi elaborada a Tabela 4.11.

Tabela 4.11: Distribuição dos horizontes superficiais e subsuperficiais em todos os perfis rocha-solo da área da mineralização de U de São José de Espinharas(PB).

PERFIS	Horizontes
CAE-01	Ap RCr R
CAE-02	Ap CR ₃ Cr ₂ R
CAE-03	Ap Cr ₃ Cr ₂ R
CAE-04	Ap A Cr ₂ R
CAE-05	Ap AC CrR R
CAE-06	Ap C ₁ C ₂ R
CAE-07	Ap AC Cr ₃ Cr ₂ R

4.7.1.1 Perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05 – Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado

Considerando o processo progressivo e vertical de formação do solo, os diagramas ISOCON mostram que, nos perfis rocha-solo constituídos por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado (perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05), durante a formação do horizonte mais inferior ($R_{Cr(s)}$, no perfil CAE-01; $Cr_{2(s)}$ nos perfis CAE-02 e CAE-03, $CrR_{(s)}$ no perfil 5) a partir da rocha (R), ocorreu:

- ✓ No perfil CAE-01, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Mn e Cd em relação à rocha original e perda em Fe e Cu da rocha original (R(s) em relação ao horizonte $R_{Cr(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.29);
- ✓ No perfil CAE-02, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th e Mn em relação à rocha original e perda em Fe desta rocha em relação ao horizonte $Cr_{2(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.30);
- ✓ No perfil CAE-03, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th e Fe em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.31);
- ✓ No perfil CAE-05, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Mn, Cu e Fe em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.32);

Já considerando-se como material original a rocha e o horizonte subsuperficial ($Cr_{2(s)}$ nos perfis CAE-02 e CAE-03, $CrR_{(s)}$ no perfil CAE-05) para a formação do horizonte que lhe está imediatamente sobrejacente ($Cr_{3(s)}$ nos perfis CAE-02 e CAE-03, $AC_{(s)}$ no perfil CAE-05), o tratamento nos diagramas ISOCON revela que ocorreu:

- ✓ No perfil CAE-02, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn e Pb em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.33) e um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , Fe, Mn e Pb em relação ao horizonte subjacente $Cr_{2(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.34);
- ✓ No perfil CAE-03, um ganho em ^{232}Th e Fe em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.35) e um ganho em Fe em relação ao horizonte subjacente $Cr_{2(s)}$ acompanhado de perda em ^{238}U e ^{232}Th do horizonte subjacente $Cr_{2(s)}$ em relação ao horizonte $Cr_{3(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.36);

- ✓ No perfil CAE-05, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn, Co, Ni, Cu e Pb e em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.37) e um ganho em Mn e Ni em relação ao horizonte subjacente $\text{CrR}_{(s)}$, além de perda em ^{238}U e Fe do horizonte $\text{CrR}_{(s)}$ em relação ao horizonte $\text{AC}_{(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.38).

Durante a formação do horizonte superficial ($\text{Ap}_{(s)}$ em todos os perfis), a partir da rocha e do horizonte imediatamente subjacente ($\text{RCr}_{(s)}$, no perfil CAE-01; $\text{Cr}_{3(s)}$ nos perfis CAE-02 e CAE-03, $\text{AC}_{(s)}$ no perfil CAE-05) ocorreu:

- ✓ No perfil CAE-01, um ganho em Mn, Cd e Pb em relação à rocha original, além de perda em ^{238}U , ^{232}Th e Fe da rocha original ($\text{R}_{(s)}$) em relação ao horizonte superficial Ap (Anexo 2, Figura 4.39); ganho em Pb em relação ao horizonte subjacente $\text{RCr}_{(s)}$ e perda em ^{238}U , ^{232}Th e Mn deste horizonte ($\text{RCr}_{(s)}$) em relação ao horizonte superficial ($\text{Ap}_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.40);
- ✓ No perfil CAE-02, um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Mn e Pb em relação à rocha original além de perda em Fe da rocha em relação ao horizonte superficial Ap (Anexo 2, Figura 4.41); um ganho em Pb em relação ao horizonte subjacente $\text{Cr}_{3(s)}$ acompanhado de perda em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Mn deste horizonte ($\text{Cr}_{3(s)}$) em relação ao horizonte Ap (Anexo 2, Figura 4.42);
- ✓ No perfil CAE-03, um ganho em Fe em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.43) e também em relação ao horizonte subjacente $\text{Cr}_{3(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.44);
- ✓ No perfil CAE-05, um ganho em ^{232}Th , Mn, Cu, Ni, Pb e Co em relação à rocha original, acompanhado de perda em ^{238}U e Fe desta rocha em relação ao horizonte Ap (Anexo 2, Figura 4.45); além de perda em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn, Ni e Cu em relação ao horizonte subjacente $\text{RCr}_{(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.46).

4.7.1.2 Perfil CAE-04 – Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito

Considerando o processo progressivo e vertical de formação do solo, os diagramas ISOCON mostram que, perfil rocha-solo constituído por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito (perfil CAE-04) durante a formação do horizonte do solo, ocorreu:

- ✓ perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn e Pb da rocha original ($\text{R}_{(s)}$), em relação ao horizonte subsuperficial RCr (Anexo 2, Figura 4.47);

- ✓ perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn e Pb da rocha original ($R_{(s)}$), em relação ao horizonte subsuperficial $A_{(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.48);
- ✓ do horizonte subsuperficial $A_{(s)}$ em relação ao horizonte subjacente $Cr_{2(s)}$, ocorreu um ganho em Fe e Mn, porém do horizonte $Cr_{2(s)}$ em relação ao horizonte $A_{(s)}$ ocorreu perda em ^{238}U (Anexo 2, Figura 4.49);
- ✓ do horizonte superficial $Ap_{(s)}$ ocorreu um ganho em Mn em relação à rocha original ($R_{(s)}$), porém desta rocha em relação ao horizonte Ap , ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Co e Pb (Anexo 2, Figura 4.50);
- ✓ do horizonte superficial $Ap_{(s)}$ a partir do horizonte em relação ao horizonte imediatamente subjacente $A_{(s)}$, ocorreu um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn e Pb (Anexo 2, Figura 4.51).

4.7.1.3 Perfil CAE-06 – Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss

Considerando o processo progressivo e vertical de formação do solo, os diagramas ISOCON mostram que, no perfil rocha-solo constituído por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss (perfil CAE-06) durante a formação:

- ✓ do horizonte mais inferior ($C_{2(s)}$) a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu ganho em ^{232}Th e Cu em relação à rocha original e perda em ^{238}U , Fe e Mn desta rocha em relação ao horizonte $C_{2(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.52);
- ✓ do horizonte subsuperficial ($C_{1(s)}$) a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu ganho em Ni em relação à rocha original e perda em ^{238}U , Fe e Mn desta rocha em relação ao horizonte $C_{1(s)}$ (Anexo 2, Figura 4.53);
- ✓ do horizonte subsuperficial ($C_{2(s)}$) em relação ao horizonte sobrejacente ($C_{2(s)}$) ocorreu perda em ^{232}Th , ^{40}K e Fe (Anexo 2, Figura 4.54);
- ✓ do horizonte superficial (Ap) a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu ganho em Cu e Pb em relação à rocha original e perda em ^{238}U , ^{232}Th e Fe desta rocha em relação ao horizonte Ap (Anexo 2, Figura 4.55);

- ✓ do horizonte superficial (Ap) a partir do horizonte subsuperficial subjacente ($C_{1(s)}$) ocorreu um enriquecimento relativo em Mn e ^{238}U , além de perda em ^{232}Th e Fe do horizonte $C_{1(s)}$ em relação ao horizonte Ap (Anexo 2, Figura 4.56).

4.7.1.4 Perfil CAE-07 – Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito

Considerando o processo progressivo e vertical de formação do solo, os diagramas ISOCON mostram que, no perfil rocha-solo constituído por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito (perfil CAE-07) durante a formação:

- ✓ do horizonte mais inferior ($Cr_{2(s)}$) a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu um ganho em Fe, acompanhado de uma perda em ^{232}Th , ^{40}K , Mn, Co e Cu em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.57);
- ✓ do horizonte subsuperficial ($Cr_{3(s)}$) a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu um ganho em ^{238}U , Fe e Cu, acompanhado de uma perda em ^{232}Th e Mn em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.58);
- ✓ do horizonte subsuperficial ($Cr_{3(s)}$) a partir do horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{2(s)}$) ocorreu um ganho em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn e Cu em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{2(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.59);
- ✓ do horizonte subsuperficial ($AC_{(s)}$) a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu um ganho em Fe, acompanhado de uma perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Co e Cu em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.60);
- ✓ do horizonte subsuperficial ($AC_{(s)}$) a partir do horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{3(s)}$) ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe e Cu, em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{3(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.61);
- ✓ do horizonte superficial $Ap_{(s)}$ a partir da rocha ($R_{(s)}$) ocorreu um ganho em Fe e Mn, acompanhado de uma perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Co e Cu em relação à rocha original (Anexo 2, Figura 4.62);

- ✓ do horizonte superficial ($Ap_{(s)}$) a partir do horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($AC_{(s)}$) ocorreu um ganho em Fe e Mn em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($AC_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.63).

De uma maneira geral, com relação à mobilidade de radionuclídeos e de metais pesados para as condições do **“status” da formação do solo (amostras coletadas na estação seca)**, os diagramas ISOCON permitiram verificar que, durante o processo de formação dos solos em relação à rocha original ocorreram comportamentos por vezes ambíguos com relação à perda e ganho de um mesmo radionuclídeo ou elemento químico.

Para efeito de simplificação do entendimento acerca dos processos envolvidos na mobilidade química dos radionuclídeos e elementos na condição “status” da formação do solo, foram consideradas duas situações: (i) a transformação da rocha original para o horizonte do solo imediatamente superior (Tabela 4.12); (ii) a transformação da rocha original para o horizonte mais superficial (Tabela 4.13). Estas situações foram escolhidas por se considerar que representam condições extremas da formação do solo, e que, portanto, contêm todas as transformações intermediárias ocorridas entre os horizontes do solo.

A seguir, as tabelas 4.12 e 4.13 sintetizam as situações acima referidas, as quais ilustram que radionuclídeos e elementos químicos sofreram ganho ou perda, e os respectivos processos que se considera como os principais envolvidos em cada caso.

Neste contexto considera-se importante destacar que as características da rocha original e dos solos autóctones formados são importantes para compreender os processos de intemperismo e pedogênese (adição, perdas, transformações e transporte no interior do perfil de substâncias químicas, além de remanejamentos mecânicos) atuantes. Tais características também contribuem para a definição do ambiente geoquímico onde ocorre concentração e/ou dispersão dos radionuclídeos e metais pesados, uma vez que influenciam na mobilidade relativa de cada um destes nos perfis rocha-solo.

É provável que, no solo, processos de adsorção, fixação, complexação, substituição isomórfica e iluviação sejam os principais responsáveis pelo enriquecimento relativo de radionuclídeos e elementos químicos nos horizontes nos perfis estudados. Ao passo que os processos de lixiviação, eluviação e dissolução promovam a mobilização desses radionuclídeos e elementos químicos entre os horizontes, ocasionando conseqüentes perdas em um determinado horizonte em relação a outro.

Tabela 4.12: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação da rocha original para o horizonte do solo imediatamente superior na condição “status” da formação do solo

PERFIL ROCHA-SOLO	“STATUS” DA FORMAÇÃO DO SOLO			
	Ganho		Perda	
	Radionuclídeos / Elementos Químicos	Processos	Radionuclídeos / Elementos Químicos	Processos
CAE-01 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (RCr _(s)))	²³⁸ U, ²³² Th, Mn, Cd		Fe	
CAE-02 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (Cr _{2(s)}))	²³⁸ U, ²³² Th, Mn	Intemperismo e Pedogênese (provocando adições de elementos), adsorção, fixação, complexação, substituição isomórfica e iluviação	Fe	Intemperismo e Pedogênese (provocando perdas de elementos), remanejamento mecânico, lixiviação, eluviação e dissolução
CAE-03 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (Cr _{2(s)}))	²³⁸ U, ²³² Th, Fe		-----	
CAE-04 Neossolo Litólico / Sienogranito (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (Cr _{2(s)}))	-----		²³⁸ U, ³² Th, ⁴⁰ K, Fe, Mn, Pb	
CAE-05 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (CrR _(s)))	²³⁸ U, ²³² Th, Fe, Mn, Cu		---	
CAE-06 Neossolo Regolítico / Augen Gnaiss (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (C _{2(s)}))	²³² Th, Cu		²³⁸ U, Fe, Mn	
CAE-07 Neossolo Regolítico / Granodiorito (Rocha original (R _s) – Horizonte imediatamente superior (Cr _{2(s)}))	Fe		²³² Th, ⁴⁰ K, Mn, Co, Cu	

Tabela 4.13: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação da rocha original para o horizonte mais superficial na condição “status” da formação do solo

PERFIL ROCHA-SOLO	“STATUS” DA FORMAÇÃO DO SOLO			
	Ganho		Perda	
	Radionuclídeos / Elementos Químicos	Processos	Radionuclídeos / Elementos Químicos	Processos
CAE-01 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	Mn, Cd, Pb	Intemperismo e Pedogênese (provocando adições de elementos), adsorção, fixação, complexação, substituição isomórfica e iluviação	²³⁸ U, ²³² Th, Fe	Intemperismo e Pedogênese (provocando perdas de elementos), remanejamento mecânico, lixiviação, eluviação e dissolução
CAE-02 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	²³⁸ U, ²³² Th, Mn, Pb		Fe	
CAE-03 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	Fe		-----	
CAE-04 Neossolo Litólico / Sienogranito (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	Mn		²³⁸ U	
CAE-05 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	²³² Th, Mn, Cu, Ni, Pb, Co		²³⁸ U, Fe,	
CAE-06 Neossolo Regolítico / Augen Gnaiss (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	Pb, Cu		²³⁸ U, ²³² Th, Fe	
CAE-07 Neossolo Regolítico / Granodiorito (Rocha original (R _s) – Horizonte superficial (Ap _s))	Fe, Mn		²³⁸ U, ²³² Th, ⁴⁰ K, Co, Cu	

Os horizontes subsuperficiais sobrejacentes à rocha original dos perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05 foram enriquecidos em ^{238}U e ^{232}Th durante aos processos de intemperismo e pedogenêse, que possibilitou a transferência vertical desses radionuclídeos da rocha para o solo em formação. O enriquecimento relativo é mais expressivo no Perfil CAE-02, provavelmente, porque este perfil possui a rocha mineralizada em urânio como substrato e é o perfil que apresenta as maiores atividades e concentrações de ^{238}U e ^{232}Th (Tabelas 4.7 e 4.9, respectivamente).

Os processos de intemperismo e pedogênese rompem as séries de decaimento por causarem a perda ou a adição de radionuclídeos no sistema, ocasionando mudanças nas proporções dos isótopos “pais” em relação aos seus “filhos”, causando assim, desequilíbrio radioativo. Se após a abertura, o sistema voltar a ser fechado para trocas químicas e físicas, o equilíbrio novamente será restabelecido, tanto pelo acúmulo de possíveis produtos de decaimento que tenham sido perdidos, como também pelo decaimento do produto membro da série que tenha sido enriquecido durante o processo (Ivanovich & Harmon, 1992; Oliveira, 2006). Os perfis rocha-solo aqui estudados não se comportam como um sistema fechado, uma vez que se encontram em um ambiente superficial expostos aos processos de intemperismo, onde, provavelmente, o ^{238}U e ^{232}Th estão sendo mobilizados no sentido da rocha para os horizontes do solo e devem estar sendo redepositados. Uma vez no solo, estes radionuclídeos encontram condições de acidez que influenciam sua solubilidade e, provavelmente, definem suas formas químicas, o que, por sua vez, permitem que sejam hospedados em minerais de alteração como a carnotita $((\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{VO}_4)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}))$, presente no perfil CAE-02; e/ou adsorvidos à superfície ou mesmo incorporados nos espaços interplanares da estrutura do argilomineral montmorilonita $(\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot n\text{H}_2\text{O})$, presente nos perfis CAE-02 e CAE-03, e/ou sejam adsorvidos e/ou formem complexos com a matéria orgânica e carbonatos existentes no solo dos perfis estudados.

Especificamente em relação ao radionuclídeo ^{40}K , no solo dos perfis CAE-04 e CAE-07, é possível que o mesmo esteja enriquecendo os horizontes mais superficiais do solo através do processo de migração fluida (Heier & Billings, 1969), cuja direção do fluxo de lixiviação ocorre no sentido de baixo para cima, principalmente na estação seca, quando as taxas de evapotranspiração são maiores que as de precipitação.

Com relação aos metais pesados enfocados no presente estudo, pode-se afirmar que, em solos autóctones jovens, como é o caso dos solos aqui estudados, as concentrações naturais destes elementos dependem principalmente do tipo de rocha sobre a qual os solos se desenvolveram, especialmente dos constituintes minerais desta rocha (Zhang *et al.*, 2002). Além disso, dependem também dos processos pedogenéticos, da composição e proporção dos componentes de sua fase sólida (Fadigas *et al.*, 2002), tais como a concentração e a composição da fração argila e o conteúdo de matéria orgânica e

ainda de suas condições físico-químicas (Barona & Romero, 1996). Contudo, a natureza dos constituintes minerais e orgânicos é o fator determinante final para o acúmulo de metais pesados na fase sólida do solo, sendo que as mais importantes interfaces envolvidas na adsorção destes elementos são devidas à presença no solo de colóides inorgânicos, tais como os argilominerais (especialmente os filossilicatos), óxidos e hidróxidos de Fe, Al, Mn, fosfatos e carbonatos, além dos colóides orgânicos (Soares, 2004).

Desta forma, é provável que os elementos Fe, Mn, Co, Cu e Pb estejam sendo perdidos da rocha, através dos processos de intemperismo e pedogênese. Estes elementos químicos por sua vez são adicionados ao solo, onde, provavelmente, devido às reações de adsorção, complexação, solubilização, oxi-redução e precipitação (Sparks, 1995), ocorre sua posterior redistribuição entre os vários horizontes e ocasiona relativo enriquecimento do solo nestes elementos.

Vale salientar que, embora estes sejam os principais processos que regulam as mobilidades dos metais no solo e que ocorrem simultaneamente, os mecanismos de adsorção são determinantes no controle da mobilidade destes elementos (Ford *et al.*, 2001). Assim, nos solos ácidos dos perfis estudados, os metais supracitados encontram condições físico-químicas que influenciam sua solubilidade e, provavelmente, definem suas formas químicas que, por sua vez, permitem que sejam adsorvidos ao argilomineral montmorilonita ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot n\text{H}_2\text{O}$), especificamente no caso dos perfis CAE-02 e CAE-03, à muscovita ($\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH})_2$) nos perfis CAE-01, CAE-03 e CAE-05, à illita ($\text{K}_{1-1,5}\text{Al}_4(\text{Si}_{7-6,5}\text{Al}_{1-1,5}\text{O}_{20})(\text{OH})_4$) nos perfis CAE-04, CAE-06 e CAE-07, e/ou sejam adsorvidos e/ou formem complexos com a matéria orgânica e carbonatos existentes nos solos dos perfis estudados.

Com relação ao enriquecimento relativo do solo em Cd em relação à rocha original, observado no diagrama ISOCON, especificamente do perfil CAE-01 (Figura 4.41), é possível que este elemento tenha sido proveniente da rocha original, onde, provavelmente ocorre associado ao Zn (cuja concentração na rocha é de 10 ppm (Souza Neto, 2004)), com o qual tem semelhança em relação à estrutura atômica e comportamento químico (Alloway, 1990). E, sua ocorrência, pode ainda estar associada aos sulfetos de Cu e Pb, devido a sua afinidade por grupos contendo S (Greenwood & Earnshaw, 1989). No solo, o Cd é considerado um elemento imóvel (Alloway, 1990), mas tende a aumentar sua mobilidade em solos ácidos (Naidu *et al.*, 1994), como os do presente estudo, sendo os processos de adsorção que, provavelmente controlam sua distribuição entre as formas solúveis e as retidas pelos constituintes sólidos do solo (Kabata-Pendias & Pendias, 2001).

Já no caso específico do Pb que é mobilizado da rocha para o solo nos perfis CAE-01, CAE-02, CAE-05 e CAE-06, é provável que esteja sendo formado no próprio solo, por decaimento radioativo dos radionuclídeos das séries do U e Th (Arya, 1966) e/ou ainda esteja contido no plagioclásio albita ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), pelo processo de substituição isomórfica

uma vez que possui raio iônico intermediário entre K^+ e Ca^{2+} , que podem, por sua vez, ser substituídos pelo Pb e assim este elemento ser incorporado à estrutura do plagioclásio (BGS, 1991; Kabata-Pendias & Pendias, 2001), presente em todos os perfis estudados.

4.7.2 Mobilidade sazonal de Radionuclídeos e de Metais Pesados para as condições do solo já formado

Na denominação dos horizontes do solo e das rochas que compõem os perfis rocha-solo estudados foi acrescentado “(s)” e “(ch)” em subscrito, a fim de identificá-los quanto à estação climática (seca (s) ou chuvosa (ch)) na qual foram coletadas as amostras para se avaliar a mobilidade para as condições do solo já formado.

Para entender os resultados obtidos neste estudo é importante compreender que os processos de intemperismo, especialmente químicos, que atuam sobre as rochas que contêm radionuclídeos das séries radioativas naturais, ocasionam a separação destes elementos e o rompimento do estado de equilíbrio radioativo secular das rochas. No ambiente superficial, os radionuclídeos apresentam diferentes propriedades químicas (estado de oxidação, mobilidade) e sua distribuição em um perfil de alteração é o resultado de mudanças químicas ocorridas entre fases, em um modelo de sistema aberto (Rosholt, 1966; Ivanovich & Harmon, 1992; Dickin, 1995). Da mesma forma, a maior ou menor mobilidade dos metais pesados será determinada pelas características do solo, tais como conteúdo original do metal, textura, teores e tipos de argila, pH, teor de matéria orgânica entre outros, que influenciarão as reações de adsorção/dessorção, precipitação/dissolução, complexação e oxi-redução (Oliveira & Mattiazzo, 2001).

É importante considerar ainda, que no contexto climático dos trópicos, durante o intemperismo químico e a pedogênese, a lixiviação, o transporte e deposição de elementos solúveis são comandados principalmente pela circulação da fase aquosa do sistema de alteração, enquanto modificações de volume da rocha fazem aparecer níveis de concentrações relativas, neste caso, sem o deslocamento dos elementos. Em tal ambiente, em geral oxidante acima do nível freático, podem ocorrer duas situações limite, que variam em função do pH e das condições de lixiviação: o elemento considerado migra para a parte inferior do perfil ou permanece na parte superficial, e, dependendo das condições do relevo local, pode ser lixiviado nos sentidos vertical e/ou lateral (Granier, 1973). Assim, a porção superficial dos solos formados pelo intemperismo fica sujeita aos chamados processos pedogenéticos que promovem a adição, perda, transformação e transporte do material do solo. Os principais processos são o de eluviação e iluviação, respectivamente processos de perda e adição de material; e a lixiviação, que remove os sais solúveis (Oliveira, 2005).

Tomando como base os diagramas ISOCON, serão feitas, a seguir, considerações quanto à mobilidade vertical dos radionuclídeos e metais pesados, alvos deste estudo, nos perfis rocha-solo, relacionando os horizontes dos solos destes perfis nas duas condições climáticas (seca e chuvosa), nas quais foram coletadas as amostras para se avaliar a mobilidade para as condições do solo já formado.

Vale salientar que as observações realizadas a partir dos diagramas ISOCON serão feitas em diagramas seqüenciados na ordem do sentido vertical, de cima para baixo, ou seja, do horizonte superficial Ap para os horizontes subsuperficiais (AC, C₁, C₂, RCr e CrR), uma vez que os processos a serem considerados para avaliar a mobilidade dos elementos no solo, neste contexto, é a iluviação, eluviação e lixiviação resultantes da entrada de água no sistema por ocasião da estação chuvosa, os quais atuariam verticalmente de cima para baixo.

4.7.2.1 Perfis CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05 – Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado

Analisando-se os perfis rocha-solo constituído por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado, a partir dos diagramas ISOCON, verifica-se que:

✓ No perfil CAE-01:

- ocorreu perda em ²³⁸U, ²³²Th, Fe, Mn e Pb no horizonte superficial Ap na estação seca (Ap_(s)) em relação a este horizonte na estação chuvosa (Ap_(ch)). Ocorrendo ganho em Cu neste horizonte na estação chuvosa (Ap_(ch)) em relação à estação seca (Ap_(s)) (Anexo 2, Figura 4.64);

- ocorreu perda em Cd e Pb no horizonte subsuperficial RCr na estação seca (RCr_(s)) em relação a este horizonte na estação chuvosa (RCr_(ch)). Ocorrendo ganho em ²³⁸U, ²³²Th, Fe e Mn neste horizonte na estação chuvosa (RCr_(ch)) em relação à estação seca (RCr_(s)) (Anexo 2, Figura 4.65);

- ocorreu perda em Pb no horizonte superficial (Ap_(ch)) em relação ao horizonte subsuperficial subjacente (RCr_(ch)), na estação chuvosa. Ocorrendo ganho em ²³⁸U, ²³²Th, Fe e Mn no horizonte subsuperficial (RCr_(ch)) em relação ao horizonte superficial imediatamente sobrejacente Ap_(ch), na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.66).

✓ No perfil CAE-02:

- ocorreu perda em Fe, Mn e Pb no horizonte superficial Ap na estação seca ($Ap_{(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$). Ocorrendo ganho em ^{238}U e ^{232}Th neste horizonte na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.67);

- ocorreu perda relativa em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn e Pb no horizonte subsuperficial Cr_3 na estação seca ($Cr_{3(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$). Ocorrendo um ganho relativamente pequeno em ^{226}Ra neste horizonte na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$) em relação à estação seca ($Cr_{3(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.68);

- ocorreu perda relativa em ^{238}U , ^{232}Th e Fe, no horizonte subsuperficial Cr_2 na estação seca ($Cr_{2(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($Cr_{2(ch)}$) (Anexo 2, Figura 4.69);

- ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , Mn e Pb, no horizonte superficial $Ap_{(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ na estação chuvosa e, ocorreu ganho em Fe no horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ em relação ao horizonte superficial $Ap_{(ch)}$, na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.70);

- ocorreu perda em Fe no horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial $Cr_{2(ch)}$ na estação chuvosa e, ocorreu ganho em ^{238}U e ^{232}Th no horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.71);

✓ No perfil CAE-03:

- ocorreu perda em ^{238}U no horizonte superficial Ap na estação seca ($Ap_{(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$), ocorrendo ganho em Fe neste horizonte na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.72);

- ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th e Fe no horizonte subsuperficial Cr_3 na estação seca ($Cr_{3(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$). (Anexo 2, Figura 4.73);

- ocorreu ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Pb neste horizonte na estação chuvosa ($Cr_{2(ch)}$) em relação à estação seca ($Cr_{2(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.74);

- ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn e Pb, no horizonte superficial $\text{Ap}_{(\text{ch})}$ em relação ao horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{3(\text{ch})}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.75);

- ocorreu ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Pb no horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{2(\text{ch})}$ em relação ao horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{3(\text{ch})}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.76);

✓ No perfil CAE-05:

- ocorreu perda em ^{238}U , Fe, Mn, Ni, Cu e Pb no horizonte superficial Ap na estação seca ($\text{Ap}_{(\text{s})}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{Ap}_{(\text{ch})}$). Ocorrendo ganho em ^{232}Th neste horizonte na estação chuvosa ($\text{Ap}_{(\text{ch})}$) em relação à estação seca ($\text{Ap}_{(\text{s})}$) (Anexo 2, Figura 4.77);

- ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn, Ni, Cu e Pb no horizonte subsuperficial AC na estação seca ($\text{AC}_{(\text{s})}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{AC}_{(\text{ch})}$) (Anexo 2, Figura 4.78);

- ocorreu perda em ^{238}U , Fe, Cu, Ni e Pb no horizonte subsuperficial CrR na estação seca ($\text{CrR}_{(\text{s})}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{CrR}_{(\text{ch})}$), ocorrendo ganho em ^{232}Th e Mn, neste horizonte na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.79);

- ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , Mn e Pb, no horizonte superficial $\text{Ap}_{(\text{ch})}$ em relação ao horizonte subsuperficial $\text{AC}_{(\text{ch})}$ na estação chuvosa, ocorrendo ganho em Fe, Co, Ni e Cu, no horizonte subsuperficial $\text{AC}_{(\text{ch})}$ em relação ao horizonte superficial $\text{Ap}_{(\text{ch})}$, na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.80);

- ocorreu perda em Co, Ni e Pb no horizonte subsuperficial $\text{AC}_{(\text{ch})}$ em relação ao horizonte subsuperficial $\text{CrR}_{(\text{ch})}$ na estação chuvosa, e ocorreu ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Mn no horizonte subsuperficial $\text{CrR}_{(\text{ch})}$ em relação ao horizonte subsuperficial $\text{AC}_{(\text{ch})}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.81).

4.7.2.2 Perfil CAE-04– Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito

Analisando-se o perfil rocha-solo constituído por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito, a partir dos diagramas ISOCON, verifica-se que:

- ✓ ocorreu perda em ^{232}Th , Fe, Mn e Pb no horizonte superficial Ap na estação seca ($\text{Ap}_{(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{Ap}_{(ch)}$) (Anexo 2, Figura 4.82);
- ✓ ocorreu perda em Fe no horizonte subsuperficial A na estação seca ($\text{A}_{(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{A}_{(ch)}$), e ganho em ^{232}Th e Mn, neste horizonte na estação chuvosa ($\text{A}_{(ch)}$) em relação à estação seca ($\text{A}_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.83);
- ✓ ocorreu perda em Fe no horizonte subsuperficial Cr_2 na estação seca ($\text{Cr}_{2(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{Cr}_{2(ch)}$), e ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Mn e Pb, neste horizonte na estação chuvosa ($\text{Cr}_{2(ch)}$) em relação à estação seca ($\text{Cr}_{2(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.84);
- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn e Cu no horizonte superficial $\text{Ap}_{(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente $\text{A}_{(ch)}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.85);
- ✓ ocorreu perda em Fe no horizonte subsuperficial $\text{A}_{(ch)}$ em relação ao horizonte subjacente $\text{Cr}_{2(ch)}$ na estação chuvosa, e ganho em ^{238}U , Mn e Pb no horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{2(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente sobrejacente $\text{A}_{(ch)}$, na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.86);

4.7.2.3 Perfil CAE-06– Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss

Analisando-se o perfil rocha-solo constituído por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss, a partir dos diagramas ISOCON, verifica-se que:

- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , Fe, Mn e Cu no horizonte superficial Ap na estação seca ($\text{Ap}_{(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{Ap}_{(ch)}$), e ganho em ^{232}Th e ^{40}K neste horizonte, na estação chuvosa ($\text{Ap}_{(ch)}$) em relação à estação seca ($\text{Ap}_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.87);
- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Cu no horizonte subsuperficial C_1 na estação seca ($\text{C}_{1(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{C}_{1(ch)}$), e ganho em ^{40}K e Mn, neste horizonte na estação chuvosa ($\text{C}_{1(ch)}$) em relação à estação seca ($\text{C}_{1(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.88);

- ✓ ocorreu perda em ^{232}Th , ^{40}K , Fe e Cu no horizonte subsuperficial C_2 na estação seca ($C_{2(s)}$) em relação a este horizonte ($C_{2(ch)}$) na estação chuvosa, e ganho em ^{238}U e Mn, neste horizonte na estação chuvosa ($C_{2(ch)}$) em relação à estação seca ($C_{2(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.89);
- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe e Mn no horizonte superficial $A_{p(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente $C_{1(s)}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.90)
- ✓ ocorreu perda em ^{40}K , Mn e Pb no horizonte subsuperficial $C_{1(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial subjacente $C_{2(s)}$ na estação chuvosa e ganho em ^{238}U , ^{232}Th e Fe no horizonte subsuperficial ($C_{2(ch)}$) em relação ao horizonte imediatamente sobrejacente $C_{1(ch)}$, na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.91).

4.7.2.4 Perfil CAE-07– Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito

Analisando-se o perfil rocha-solo constituído por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito, a partir dos diagramas ISOCON, verifica-se que:

- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Cu no horizonte superficial A_p na estação seca ($A_{p(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($A_{p(ch)}$), e ganho em Mn e Pb, neste horizonte na estação chuvosa ($A_{p(ch)}$) em relação à estação seca ($A_{p(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.92);
- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th e Cu no horizonte subsuperficial AC na estação seca ($AC_{(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($AC_{(ch)}$), e ganho em Fe e Pb, neste horizonte na estação chuvosa ($AC_{(ch)}$) em relação à estação seca ($AC_{(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.93);
- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K e Cu no horizonte subsuperficial Cr_3 na estação seca ($Cr_{3(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$), e ganho em Fe, neste horizonte na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$) em relação à estação seca ($Cr_{3(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.94);

- ✓ ocorreu perda em ^{238}U , ^{232}Th e Cu no horizonte subsuperficial Cr_2 na estação seca ($\text{Cr}_{2(s)}$) em relação a este horizonte na estação chuvosa ($\text{Cr}_{2(ch)}$), e ganho em ^{40}K , Fe e Mn, neste horizonte na estação chuvosa ($\text{Cr}_{2(ch)}$) em relação à estação seca ($\text{Cr}_{2(s)}$) (Anexo 2, Figura 4.95);
- ✓ ocorreu perda em ^{40}K , Fe, Mn e Pb no horizonte superficial $\text{Ap}_{(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial subjacente $\text{AC}_{(ch)}$ na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.96);
- ✓ ocorreu perda em Pb no horizonte subsuperficial $\text{AC}_{(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial subjacente $\text{Cr}_{3(ch)}$ na estação chuvosa e, ganho em ^{238}U , ^{232}Th , Fe e Co no horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{3(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente sobrejacente $\text{AC}_{(ch)}$, na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.97);
- ✓ ocorreu perda em Co no horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{3(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial subjacente $\text{Cr}_{2(ch)}$ na estação chuvosa e ganho em ^{40}K , Fe e Mn no horizonte subsuperficial $\text{Cr}_{2(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente sobrejacente $\text{Cr}_{3(ch)}$, na estação chuvosa (Anexo 2, Figura 4.98);

Da mesma forma que o estudo anterior (item 4.7.1), para efeito de simplificação do entendimento acerca dos processos envolvidos na mobilidade química dos radionuclídeos e elementos na condição “sazonal” do solo já formado, foram consideradas duas situações: (i) a transformação do horizonte superficial na condição “status” da formação do solo para o horizonte superficial na condição “sazonal” do solo já formado (Tabela 4.14); (ii) a transformação de um horizonte para o outro imediatamente sobrejacente (Tabela 4.15). Estas situações foram escolhidas por se considerar que representam situações que possibilitam o entendimento sobre a mobilidade vertical, no sentido de cima para baixo, dos elementos e radionuclídeos estudados e que podem ser observadas nas tabelas 4.14 e 4.15 as quais ilustram que radionuclídeos e elementos químicos sofreram ganho ou perda, e os respectivos processos considerados como os principais envolvidos em cada caso.

Tabela 4.14: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação do horizonte superficial na condição “status” da formação do solo para o horizonte superficial na condição “sazonal” do solo já formado

PERFIL ROCHA-SOLO	“SAZONAL” NO SOLO FORMADO			
	Ganho		Perda	
	Radionuclídeos / Elementos Químicos	Processos	Radionuclídeos / Elementos Químicos	Processos
CAE-01 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	Cu	Iluviação, Complexação, Formação de novos compostos, Adsorção, Fixação, Substituição isomórfica, Decaimento radioativo	²³⁸ U, ²³² Th, Fe, Mn, Pb	Dissolução Eluviação Lixiviação Decaimento radioativo
CAE-02 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	²³⁸ U, ³² Th		Fe, Mn, Pb	
CAE-03 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	Fe		²³⁸ U	
CAE-04 Neossolo Litólico / Sienogranito (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	²³² Th, Mn		Fe	
CAE-05 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	²³² Th		²³⁸ U, Fe, Mn, Ni, Cu, Pb	
CAE-06 Neossolo Regolítico / Augen Gnaiss (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	²³² Th, ⁴⁰ K		²³⁸ U, Fe, Mn, Cu	
CAE-07 Neossolo Regolítico / Granodiorito (Horizonte superficial na estação seca (Ap _(s)) – Horizonte superficial na estação chuvosa (Ap _(ch)))	Mn, Pb		²³⁸ U, ²³² Th, Fe, Cu	

Tabela 4.15: Síntese do estudo sobre a mobilidade dos radionuclídeos e metais pesados estudados nos perfis rocha-solo da área de mineralização de U de São José de Espinharas considerando a transformação de um horizonte para o outro imediatamente sobrejacente

PERFIL ROCHA-SOLO	CONDIÇÕES DO ESTUDO SOBRE A MOBILIDADE							
	“STATUS” DA FORMAÇÃO DO SOLO				“SAZONAL” NO SOLO FORMADO			
	Ganho	Processos	Perda	Processos	Ganho	Processos	Perda	Processos
CAE-01 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	Mn, Cd, Pb		^{238}U , ^{32}Th , Fe		^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn, Cu		^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn, Cd, Pb	
CAE-02 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	^{238}U , ^{232}Th , Mn, Pb	Intemperismo e Pedogênese, provocando adições de elementos,	Fe	Intemperismo Pedogênese, provocando perdas de elementos,	^{238}U , ^{32}Th , ^{226}Ra , Fe	Iluminação, Complexação Formação de novos compostos,	^{238}U , ^{32}Th , ^{226}Ra , Mn, Pb	Dissolução Eluviação Lixiviação Decaimento radioativo
CAE-03 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	Fe	remanejamen to mecânico, iluviação	-----	remanejamen to mecânico, eluviação	^{238}U , ^{32}Th , Fe, Pb	Adsorção, Fixação, Substituição isomórfica, Migração fluida,	^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn, Pb	
CAE-04 Neossolo Litólico / Sienogranito (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn, Pb		^{238}U , ^{32}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Co, Ni, Pb		^{238}U , ^{32}Th , Mn, Pb	Decaimento radioativo	^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn	
CAE-05 Neossolo Litólico / Sienogranito albitizado (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	^{232}Th , Mn, Co, Ni, Cu, Pb		^{238}U , Fe		^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn, Ni, Co, Cu		^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn, Ni, Co, Cu, Pb	
CAE-06 Neossolo Regolítico / Augen Gnaiss (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Mn, Ni, Cu, Pb		^{238}U , ^{32}Th , Fe, Mn		^{238}U , ^{32}Th , ^{40}K , Fe, Mn		^{238}U , ^{32}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Cu, Pb	
CAE-07 Neossolo Regolítico / Granodiorito (Rocha original (Rs) – Horizonte superficial (Ap))	^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Cu		^{238}U , ^{32}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Co, Cu		^{238}U , ^{32}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Co, Pb		^{238}U , ^{32}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Co, Cu, Pb	

O ambiente geoquímico dos solos dos perfis estudados é caracterizado pela acidez (pH variando entre 5,3-6,6) e, provavelmente, condições oxidantes uma vez que são predominantemente arenosos e estão em uma condição climática de semi-aridez.

Provavelmente, os processos que promoveram perdas relativas em radionuclídeos e metais pesados nos solos destes perfis, na estação chuvosa, foram aqueles relacionados com a dissolução, eluviação e lixiviação, e, os processos relacionados com o enriquecimento relativo, provavelmente, foram migração fluida, iluviação, complexação, substituição isomórfica, fixação, formação de novos compostos, como a carnotita ($K_2(VO_4)_2 \cdot 3H_2O$) no perfil CAE-02, e, principalmente adsorção aos colóides do solo.

Um fator muito importante a ser considerado com relação aos aspectos relativos à mobilidade de ^{238}U e ^{232}Th no solo, é o pH, uma vez que, dependendo do pH do meio, estes radionuclídeos, bem como a maior parte dos minerais e fases coloidais que os contêm, podem ser afetados pelos processos pedogenéticos de eluviação-iluviação (Langmuir, 1978; Dickson & Scott 1997; Wilford *et al.*, 1997).

O intervalo de pH de máxima sorção do íon uranila (UO_2^{2+}) em oxihidróxido férrico amorfo está entre 5 e 8 (Langmuir, 1978), faixa na qual estão enquadrados os perfis rocha-solo aqui enfatizados. Esta faixa de pH é também a de solubilidade mínima dos minerais de U^{4+} que podem, ainda, formar soluções sólidas com elementos tetravalentes como Ce, Zr e ^{232}Th , por exemplo, nos minerais acessórios cerianita ($(Ce^{4+}, Th)O_2$), zircão ($ZrSiO_4$) e uranotorianita ($(Th, U)O_2$), os quais são altamente resistentes ao intemperismo (Langmuir, 1978). Além disso, esta é a faixa de pH considerada como zona de estabilidade do Fe_2O_3 e Al_2O_3 e na qual a carga elétrica superficial do complexo coloidal silicato-óxido é negativa. Tal conjunto de fatores favorece a adsorção de parcelas importantes do $(UO_2)^{2+}$, assim como do Th^{4+} , liberados durante o intemperismo químico e pedogênese (Rebelo *et al.*, 2002).

No ambiente geoquímico oxidante e ácido dos solos aqui estudados, o ^{238}U possui alta mobilidade sendo relativamente solúvel como espécies U^{6+} (Weijden & Weijden, 1995). Nestas formas químicas, pode ser lixiviado e resultar em empobrecimento relativo do horizonte do solo ou ainda pode ser adsorvido aos oxihidróxidos de Fe e Mn e/ou à matéria orgânica e/ou ao argilomineral (Rogers & Adams, 1969b) montmorilonita ($(Al_2Si_4O_{10} \cdot nH_2O)$) presente nos perfis CAE-02 e CAE-03, ou illita ($(K_{1-1,5} Al_4 (Si_{7-6,5} Al_{1-1,5} O_{20})(OH)_4)$) presente nos perfis CAE-06 e CAE-07, e resultar em enriquecimento relativo dos horizontes do solo. O ^{238}U pode ainda se associar a carbonatos, a sulfatos e fosfatos para formarem espécies solúveis (Dickson & Scott, 1997). Vale salientar, que isto pode ocorrer principalmente no que diz respeito ao íon fosfato nos perfis cuja rocha original é o Sienogranito albitizado (CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05). Isto porque esta rocha mineralizada em urânio é enriquecida em P_2O_5 (concentração total equivalente a 4,89% (Souza Neto, 2004)) e, durante os processos de intemperismo e pedogênese pode ter enriquecido o solo em fosfato. É

possível, ainda, que o ^{238}U contido nesta rocha tenha sido hidrolizado, solubilizado, oxidado e lixiviado na forma do íon uranila (UO_2^{2+}), de acordo com o que propõe Rösler & Lange (1972), e tenha sido fixado na carnotita ($\text{K}_2(\text{UO}_2)_2(\text{VO}_4)_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$), presente no solo do perfil CAE-02. A carnotita é um mineral de alteração formado principalmente nos climas com características de aridez, como é o caso da área estudada, onde a evapotranspiração concentra o urânio no ambiente superficial e precipita ligantes como vanadatos e fosfatos, entre outros (Bonotto, 2004).

Já o ^{232}Th , em condições de acidez, como às dos solos aqui estudados, tem sua mobilidade aumentada (Langmuir & Herman, 1980) e pode ser lixiviado. Contudo, também pode ficar adsorvido aos oxihidróxidos de Fe e Mn, e/ou à matéria orgânica e/ou à superfície do argilomineral (Rogers & Adams, 1969a) montmorilonita ($(\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot n\text{H}_2\text{O})$) dos perfis CAE-02 e CAE-03, ou do argilomineral illita ($(\text{K}_{1-1,5} \text{Al}_4 (\text{Si}_{7-6,5} \text{Al}_{1-1,5} \text{O}_{20})(\text{OH})_4)$) dos perfis CAE-06 e CAE-07, ou ser acumulado em grãos minerais (Vinogradov, 1959) ou ainda adsorvido aos oxihidróxidos de Fe e Mn (Dickson & Scott, 1997).

Com relação à perda do ^{40}K nos solos do perfil CAE-06, é possível que este radionuclídeo esteja sendo removido por migração fluida (no sentido vertical, de cima para baixo) (Heier & Billings, 1969). Ao passo, que o ganho de ^{40}K nos horizontes dos perfis CAE-06 e CAE-07 pode ser devido à sua adsorção aos oxihidróxidos de Fe e Mn e/ou à matéria orgânica e/ou à superfície do argilomineral illita ($(\text{K}_{1-1,5} \text{Al}_4 [\text{Si}_{7-6,5} \text{Al}_{1-1,5} \text{O}_{20}](\text{OH})_4)$) (Heier & Billings, 1969), ou ainda fixação do ^{40}K na estrutura deste argilomineral (Besoain, 1985) ou pela presença de fragmentos de feldspato alcalino (KAlSi_3O_8) e potássico ($(\text{Ca}, \text{Na})\text{Al}(\text{Al}, \text{Si})\text{Si}_2\text{O}_8$), que podem estar presentes nestes solos como herança do material de origem.

Os metais em formas solúveis ou adsorvidos eletrostaticamente às superfícies dos colóides e dos argilominerais do solo correspondem à fração biodisponível (Benton, 2000), que é a fração considerada neste estudo. Desta forma, os aspectos mais importantes a serem considerados na avaliação da mobilidade desses elementos no solo, no caso do presente estudo, são os relacionados à solubilidade e adsorção destes no meio ácido e oxidante, que é o ambiente geoquímico dos perfis rocha-solo aqui enfocados.

Os diagramas ISOCON evidenciaram que os metais Fe, Mn, Co, Ni, Cu e Pb apresentaram mobilidade vertical de cima para baixo. E com relação aos metais Fe, Mn e Pb, os horizontes do solo foram ora empobrecidos, ora enriquecidos nestes elementos.

É provável que a mobilidade relativa dos metais supracitados, nos solos dos perfis estudados, tenha sido devido aos processos de dissolução, lixiviação e eluviação que ocasionaram empobrecimento relativo e processos de iluviação, adsorção, precipitação e complexação que ocasionaram enriquecimento nestes elementos, e que ocorreram nos horizontes dos solos devido à entrada de água, por ocasião do período chuvoso.

Contudo, os citados processos são influenciados por diferentes atributos do solo (pH, conteúdo de argila, matéria orgânica, presença de revestimentos de óxidos de Fe, Al e Mn) (Hayes & Traina, 1998), sendo o pH, o potencial redox e a complexação por ligantes (orgânicos e inorgânicos) os mais relevantes (Kabata-Pendias & Pendias, 2001), pois, além de afetarem diretamente a adsorção/dessorção e a precipitação/dissolução (Barrow, 1985; McBride, 1989; Basta & Tabatabai, 1992), são também os principais fatores que controlam a especiação dos elementos-traço no ambiente, afetando, por conseguinte sua mobilidade (Guilherme *et al.*, 2005).

Os elementos Fe e Mn ocorrem, geralmente, nos solos nas formas de quelatos com a matéria orgânica, além de precipitados de óxido e hidróxido. Estes últimos por sua vez podem recobrir a superfície de argilominerais, adsorver, e co-precipitar com outros elementos químicos (Kabata-Pendias & Pendias, 2001), influenciando, portanto, significativamente na solubilidade do Fe e do Mn, bem como na dos outros elementos que com eles interagem. Um exemplo disto é o Cu que forma o óxido estável com Fe^{3+} , a ferrita cúprica (CuFe_2O_4) que é pouco solúvel (Lindsay, 1979), ao contrário dos complexos de Cu com a matéria orgânica, que são muito solúveis em condições de acidez e oxidação (Alloway, 1990), tais como àquelas encontradas e admitidas, respectivamente, para os perfis rocha-solo aqui enfocados. Portanto, com base no exposto, vislumbra-se que na área estudada, o Fe e o Mn encontram-se precipitados na forma de óxidos e/ou formando quelatos orgânicos.

O diagrama ISOCON (Anexo 2, Figura 4.81) evidenciou o empobrecimento em Co do horizonte subsuperficial para outro imediatamente subjacente do perfil CAE-05. Da mesma forma, no perfil CAE-07, houve perda de um horizonte para um outro imediatamente sobrejacente (Anexo 2, Figura 4.98). Isto indica que ocorre mobilidade vertical, de cima para baixo, do elemento Co, na estação chuvosa. Provavelmente, esta mobilidade é decorrente do fato de que em condições de acidez, o Co é relativamente móvel e pode sofrer dissolução. Contudo, deve estar adsorvido à fração argila (Alloway, 1990), podendo ainda estar associado aos óxidos de Fe (Fe_3O_4) (Ure & Berrow *apud* BGS, 1991), que provavelmente ocorrem no horizonte mais inferior dos solos aqui considerados.

O elemento Ni à semelhança do Co, com o qual tem similaridade geoquímica (Goldschmidt, 1945), apresentou mobilidade vertical, de cima para baixo, no solo do perfil CAE-05, na estação chuvosa, o que foi evidenciado pelos diagramas ISOCON (Anexo 2, Figuras 4.77 e 4.81). A distribuição de Ni em perfis de solo está relacionada à matéria orgânica, aos óxidos amorfos e à fração argila. É um elemento que é facilmente mobilizado durante o intemperismo, sendo reprecipitado com óxidos de Fe e Mn (Kabata-Pendias & Pendias, 2001). E, geralmente sua mobilidade é média sob condições de oxidação e elevada em ambiente ácido (Reimann & Caritat, 1998), assim como o ambiente do solo estudado.

Desta forma, vislumbra-se que o Ni esteja sendo lixiviado do horizonte superficial, onde provavelmente ocorre em uma forma solúvel, como por exemplo, na forma de NiSO_4 (Haynes & Traina, 1998) e/ou se reprecipitando com óxidos de Fe e Mn nos horizontes subsuperficiais.

No que se refere ao elemento Cu, os diagramas ISOCON evidenciam que este elemento apresenta mobilidade apenas nos perfis CAE-01 (Anexo 2, Figura 4.64) e CAE-05 (Anexo 2, Figuras 4.77 e 4.81). No perfil CAE-01, o Cu ocorre no horizonte superficial na estação chuvosa, provavelmente, adsorvido à fração argila e/ou à matéria orgânica e/ou aos óxidos de Fe e Mn, ou formando hidróxidos e/ou ou carbonatos (Koljonen *et al.*, 1992).

Embora o Cu seja, em geral, um elemento de pouca mobilidade nos solos, sua mobilidade é aumentada sob condições de acidez, tais como àquelas encontradas no solo do perfil CAE-05, onde este elemento apresenta mobilidade vertical de cima para baixo, na estação chuvosa, evidenciada pelos diagramas ISOCON (Anexo 2, Figuras 4.77 e 4.81). Isto ocorre, provavelmente, porque no horizonte superficial o Cu deve estar em uma forma química mais solúvel, como por exemplo o CuCl^+ (Haynes & Traina, 1998), sendo lixiviado para os horizontes subsuperficiais onde, possivelmente, é adsorvido aos óxidos de Fe e Mn, e/ou forma hidróxidos e/ou ou carbonatos (Koljonen *et al.*, 1992).

No tocante ao Pb, os diagramas ISOCON evidenciaram que este elemento apresentou mobilidade vertical, de cima para baixo, nos solos de todos os perfis estudados. Sua perda pode ter ocorrido devido ao processo de lixiviação, que removeu o Pb numa forma química mais solúvel nas condições de acidez do solo, como por exemplo, na forma de PbSO_4 (Haynes & Traina, 1998). Contudo, o enriquecimento relativo dos solos neste elemento, provavelmente, deve-se ao processo de adsorção aos óxidos de Fe e Mn, e/ou aos colóides orgânicos, e/ou à superfície do argilomineral montmorilonita ($\text{Al}_2\text{Si}_4\text{O}_{10} \cdot n\text{H}_2\text{O}$) (Alloway, 1990) nos perfis CAE-02 e CAE-03, do argilomineral ilita ($\text{K}_{1-1,5} \text{Al}_4 (\text{Si}_{7-6,5} \text{Al}_{1-1,5} \text{O}_{20})(\text{OH})_4$) presente nos perfis CAE-06 e CAE-07, e/ou ainda ter sido formado no próprio solo, por decaimento radioativo dos radionuclídeos das séries do U e Th (Arya, 1966) e/ ou ainda pode ocorrer no plagioclásio albita ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), presente nos solos de todos os perfis, devido ao processo de substituição isomórfica (BGS, 1991; Kabata-Pendias & Pendias, 2001).

4.8 CONSIDERAÇÕES SOBRE USO E OCUPAÇÃO DA ÁREA ESTUDADA

Os solos autóctones devem refletir, em tese, a composição química da rocha original, apesar dos processos intempéricos e pedogênicos que se encarregam de redistribuir os elementos químicos no ambiente superficial (Oliveira, 2005). Contudo, essa redistribuição está condicionada a processos geoquímicos de migração e dispersão que, por sua vez, dependem das condições do meio (Rohde, 2004).

De acordo com os resultados obtidos no presente estudo, ocorrem processos de concentração, mobilização e dispersão vertical dos elementos radioativos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K nos perfis rocha-solo, mais intensamente nos perfis constituídos por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado. Estes elementos são os principais responsáveis pelo aumento da radiação de fundo, que é definida na área de proteção radiológica, como a soma de toda forma de radiação natural ou artificial que pode ser encontrada no meio ambiente e que não pode ser removida (Tauhata *et al.*, 2003). Dessa forma, qualquer estudo epidemiológico (como por exemplo: estudo de incidência de leucemia, de câncer de pele ou de pulmão, entre outros) ou estudo para definição de parâmetros que definam o uso e a ocupação de áreas que contenham os radionuclídeos citados em concentrações anômalas, requer o conhecimento dos níveis de radiação ambiental da área em questão.

Neste item, verificar-se-á o nível de radiação da área estudada a fim de gerar subsídios que permitam estudos ambientais, epidemiológicos e definição de políticas públicas para uso e ocupação adequada da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (PB).

4.8.1 Níveis de radiação da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (PB)

Existem diversas formas de avaliar a radiação emitida em áreas. Neste estudo, para verificar o nível de radiação da área estudada, foram calculados os seguintes parâmetros: dose anual de radiação (DAR), dose gama externa e interna (Ra_{eq}), taxa de exposição (TE) e Índice de concentração da atividade gama (I). A seguir serão mostrados e comentados os valores encontrados em cada um destes parâmetros.

4.8.1.1 Dose Anual de Radiação (DAR)

A Dose Anual de Radiação (DAR) expressa em $\mu\text{Sv/ano}$, é obtida pela expressão (Grasty *et al.*, 1994):

$$\text{DAR} = 320 + 52,56 \times [(K \times 1,505) + (U \times 0,625) + (\text{Th} \times 0,310)]$$

Onde: DAR é a dose anual de radiação ($\mu\text{Sv.ano}^{-1}$);

K é a concentração de potássio na amostra (%);

Th é a concentração de tório na amostra (ppm);

U é a concentração de urânio na amostra (ppm).

Os valores da DAR devida ao solo, encontrados no presente estudo variaram, entre 793 a $53.716 \mu\text{Sv.ano}^{-1}$, na estação seca, e entre 441 a $43.412 \mu\text{Sv.ano}^{-1}$, na estação chuvosa. Os valores da DAR devida à rocha variou entre 867 a $20.003 \mu\text{Sv.ano}^{-1}$ e entre 805 a $37.403 \mu\text{Sv.ano}^{-1}$ nas estações seca e chuvosa, respectivamente (Tabela 4.19 e Figura 4.99). Os valores máximos obtidos para solo e rocha, em ambas as estações climáticas, estão muito acima de $1.000 \mu\text{Sv.ano}^{-1}$, que é o limite internacionalmente recomendado e que serve de alerta para risco carcinogênico para população em geral (IAEA-ICRP, 1990).

Tabela 4.16: Valores da Dose Anual de Radiação (DAR), Dose gama externa e interna (R_{eq}), Taxa de exposição (TE) e Índice de Concentração de Atividade Gama (I) calculados para as amostras de solo e rocha estudadas na área do Depósito de U-ETR da São José de Espinharas (PB).

Espinalmadas (T. D.)											
ROCHA	SOLO	PERFIL	HORIZONTE	DAR ($\mu\text{Sv/ano}$)		R_{eq} (Bq.Kg^{-1})		TE (nGy.h^{-1})		I	
				Seca	Chuvosa	Seca	Chuvosa	Seca	Chuvosa	Seca	Chuvosa
SIENOGRA NITO ALBITIZADO	NEOSSOLO LITÓLICO	CAE 01	Ap	2.230	2.261	1.397	1.249	269	268	3	3
			RCr	6.187	7.243	2.209	2.269	472	475	7	9
			R	5.100	4.587	2.248	2.048	538	531	6	6
		CAE02	Ap	34.206	37.658	11.483	12.070	1589	1728	43	47
			Cr ₃	48.695	43.412	14.902	14.715	2186	2310	61	54
			Cr ₂	53.716	43.141	16.727	14.626	2432	2241	67	54
			R	20.003	37.403	7.560	12.539	1516	1864	25	47
		CAE 03	Ap	1.344	1.280	577	572	89	82	1	1
			Cr ₃	1.322	1.239	583	534	83	83	1	1
			Cr ₂	2.947	3.060	1.032	1.187	178	202	3	4
			R	2.724	3.120	714	894	138	152	3	4
		CAE 05	Ap	1.020	952	1.298	1.213	90	76	1	1
			ACr	1.008	893	1.369	1.284	90	83	1	1
			CrR	1.010	1.264	1.269	1.452	91	105	1	2
			R	1.064	1.006	1.261	1.434	92	100	1	1
SIENOGRA NITO	NEOSSOLO LITÓLICO	CAE 04	Ap	1.774	1.270	684	702	90	98	2	1
			A	1.871	1.266	674	654	99	107	2	1
			Cr ₂	1.653	1.346	495	406	141	84	2	1
			R	1.863	1.745	802	733	245	219	2	2
AUGEN GNAISSE	NEOSSOLO REGOLÍTICO	CAE 06	Ap	898	782	1.456	1.431	87	84	1	1
			C ₁	1.002	704	1.410	1.397	84	80	1	1
			C ₂	860	1.051	1.301	1.537	77	96	1	2
			R	1.052	968	1.322	1.383	80	86	1	1
GRANODIORITO	NEOSSOLO REGOLÍTICO	CAE 07	Ap	793	441	1.269	1.224	75	70	1	1
			AC	797	485	1.278	1.272	75	72	1	1
			Cr ₃	892	841	1.300	1.554	76	95	1	1
			Cr ₂	934	913	958	1.296	57	80	1	1
			R	867	805	1.184	1.282	72	80	1	1
LIMITE RECOMENDADO				1.000 $\mu\text{Sv.ano}^{-1}$		544 Bq.Kg^{-1}		55 nGy.h^{-1}		6	
FONTES				IAEA-ICRP, 1990		UNSCEAR, 1993		IAEA-ICRP, 1990; UNSCEAR, 1993			

4.8.1.2 Dose gama externa e interna (Ra_{eq})

A estimativa da dose gama externa e interna devido aos radionuclídeos (Ra_{eq}) é feita através da utilização do Ra_{eq} , assumindo que 370 Bq de $^{226}\text{Ra.Kg}^{-1}$, 259 Bq de $^{232}\text{Th.Kg}^{-1}$ e 4810 Bq de $^{40}\text{K.Kg}^{-1}$, produzem a mesma dose gama. Desta forma, o Ra_{eq} de uma amostra é definido pela expressão (Beretka & Mathew, 1985):

$$Ra_{eq} = A_{Ra} + 1,43 A_{Th} + 0,77 A_K$$

Onde: Ra_{eq} Dose gama externa e interna (Bq.Kg^{-1})

A_U Atividade específica do ^{238}U (Bq.Kg^{-1})

A_{Th} Atividade específica do ^{232}Th (Bq.Kg^{-1})

A_K Atividade específica do ^{40}K (Bq.Kg^{-1})

Os valores da Ra_{eq} encontrados no presente estudo variaram entre 495 a 16.727 Bq.Kg^{-1} , na estação seca, e entre 406 a 14.715 Bq.Kg^{-1} , na estação chuvosa. Os valores máximos obtidos, na estação seca e chuvosa, são superiores ao valor de 544 Bq.Kg^{-1} , que por sua vez equivale a 2,4 mSv.ano^{-1} , correspondente à média da dose efetiva anual originada por fontes naturais (UNSCEAR, 1993).

4.8.1.3 Taxa de Exposição (TE)

A taxa de exposição (TE), pode ser estimada pelo uso de DRCF (fator de conversão de taxa de exposição gama) que é igual a 0,0414 de ^{40}K , 0,623 de ^{232}Th e 0,461 de ^{226}Ra . O cálculo é feito através da expressão (UNSCEAR, 1993):

$$TE = 0,0414 A_K + 0,0623 A_{Th} + 0,461 A_{Ra}$$

Onde: TE : taxa de exposição (nGy.h^{-1})

A_K Atividade específica do ^{40}K (Bq.Kg^{-1})

A_{Th} Atividade específica do ^{232}Th (Bq.Kg^{-1})

A_{Ra} Atividade específica do ^{226}Ra (Bq.Kg^{-1})

Os valores da TE encontrados no presente estudo, variaram entre 57 a 2.432 Gy.h^{-1} na estação seca, e entre 70 a 2.241 nGy.h^{-1} , na estação chuvosa (Tabela 4.19). Os valores obtidos, na estação seca e chuvosa, são superiores ao valor de 55 nGy.h^{-1} , que representa 64% da média mundial de exposição devido à radiação gama terrestre (UNSCEAR, 1993).

4.8.1.4 Índice de Concentração da Atividade Gama (I)

O índice de concentração de atividade gama pode ser utilizado como uma ferramenta para identificar materiais (solos, rochas, por exemplo) que podem produzir alterações no nível de radiação de fundo. Valores de $I \leq 2$ correspondem a uma dose de 0,3 mSv/ano; valores de $I \leq 6$ correspondem a uma dose de até 1 mSv/ano. Desta forma, valores do índice de concentração de atividade gama superiores a 6 indicam que o material observado poderá provocar uma taxa de dose anual acima do limite internacionalmente recomendado para população em geral que é de 1 mSv/ano ou 1.000 μ Sv/ano (IAEA-ICRP, 1990; UNSCEAR, 1993).

O índice de concentração de atividade gama correlaciona a taxa de dose devido à radioatividade natural com a taxa de dose no ar para diferentes combinações dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K . Este índice, que pode ser empregado para obter critérios para taxas de doses, é obtido pela equação (ICRP, 1999):

$$I = A_U/300 + A_{Th}/200 + A_K/3000$$

Onde: I Índice de concentração de atividade gama

A_U Atividade específica do ^{238}U (Bq.Kg^{-1})

A_{Th} Atividade específica do ^{232}Th (Bq.Kg^{-1})

A_K Atividade específica do ^{40}K (Bq.Kg^{-1})

No presente estudo, os valores do índice de concentração de atividade gama (I) variaram entre 1 e 67 na estação seca, e entre 1 e 54 na estação chuvosa (Tabela 4.19). Portanto, os maiores valores excederam ao limite de $I \leq 6$, correspondente à uma dose de até 1 mSv.ano⁻¹ (valor limite recomendado para exposição humana e que serve de alerta para risco carcinogênico) (IAEA-ICRP, 1990; UNSCEAR, 1993).

4.8.2 Considerações sobre os níveis de radiação da área de mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (PB)

De acordo com os resultados obtidos referentes à dose anual de radiação (DAR), dose gama externa e interna (Ra_{eq}), taxa de exposição (TE) e Índice de concentração da atividade gama (I), tem-se que:

- ✓ Os valores de DAR máximos obtidos para solo e rocha, em ambas as estações climáticas, ultrapassam o limite internacionalmente recomendado para população em geral e que serve de alerta para risco carcinogênico;

- ✓ Os valores máximos obtidos da Ra_{eq} , na estação seca e chuvosa, ultrapassam ao valor médio da dose efetiva anual originada por fontes naturais na Terra;
- ✓ Todos os valores da TE encontrados no presente estudo ultrapassam ao valor que representa 64% da média mundial de exposição devido à radiação gama terrestre;
- ✓ Os valores máximos do índice de concentração de atividade gama (I) ultrapassam o valor que corresponde a uma dose limite para exposição humana e que serve de alerta para risco carcinogênico.

É importante salientar que todos os valores máximos referentes aos parâmetros em questão são encontrados, principalmente, no perfil rocha-solo CAE-02, constituído por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado.

Este perfil, assim como todos os perfis rocha-solo constituídos por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado (CAE-01, CAE-03 e CAE-05), localizam-se na área urbana habitada do município de São José de Espinharas-PB (Anexo 1), evidenciando o fato que o núcleo urbano foi desenvolvido exatamente sobre a zona mineralizada em urânio.

Existem regiões no mundo onde os níveis de radiação natural são consideravelmente altos, tais como Yangjing (China) e a região litorânea de Kerala (Índia), nas quais a taxa de dose externa devido à radiação gama varia entre 1,5 e 20 mSv.ano⁻¹.

Em vários municípios brasileiros, tais como Caetité (BA), Buena (RJ), Poços de Caldas (MG) e Guarapari (ES), a dose de radiação gama varia entre 3,5 e 10 mSv.ano⁻¹.

Em todas estas regiões há elevadas concentrações, nos solos e rochas, dos minerais monazita e zirconita, que são ricos em ²³²Th e ²³⁸U (UNSCEAR, 2000; Anjos, 2004).

Neste contexto, a área estudada localizada no município de São José de Espinharas (PB), integra o quadro de regiões de elevado nível de radiação natural da Terra, uma vez que, considerando-se o valor de Ra_{eq} igual a 544 Bq.Kg⁻¹, equivalente a 2,4 mSv.ano⁻¹ (UNCEAR, 1993), pode-se calcular o valor da dose efetiva anual na área estudada e verificar que este valor varia entre 2,18 a 73,79 mSv.ano⁻¹, na estação seca, e entre 1,79 a 64,92 mSv.ano⁻¹, na estação chuvosa.

CAPÍTULO V

CONSIDERAÇÕES FINAIS

5.1 CONCLUSÕES

- ✓ Os solos encontrados na área correspondem ao Neossolo Litólico e Neossolo Regolítico que são rasos e pouco profundos, respectivamente. São pouco desenvolvidos, ácidos, e, em geral, possuem o horizonte superficial com maior conteúdo da fração areia e matéria orgânica, e maiores valores de carbonatos totais nos horizontes subsuperficiais;
- ✓ Dentre os perfis solo-rocha estudados, destacou-se o CAE-02 constituído pelo Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado. Este perfil, localizado mais próximo ao núcleo urbano de São José de Espinharas (PB), possui maiores valores da atividade gama *in situ*, maior concentração e atividade dos radionuclídeos ^{238}U e ^{232}Th , e apresentou valores máximos dos parâmetros relacionados aos níveis de radiação ambiental da área, nas duas estações climáticas consideradas (seca e chuvosa);
- ✓ A mineralogia do perfil CAE-02 deve ser investigada com mais detalhes a fim de melhor definir as fases minerais hospedeiras dos elementos ^{238}U e ^{232}Th ;
- ✓ Em relação às concentrações da fração biodisponível dos metais pesados Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb, nenhum dos perfis solo-rocha estudados, nas duas estações climáticas, apresentou concentrações acima dos valores de referência de qualidade para os padrões brasileiro, ou de interferência, para os padrões holandês e americano.

Isto indica, portanto, que, não há risco para uso destes solos no tocante ao seu conteúdo dos metais Al, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni e Pb biodisponíveis, considerando as condições analíticas deste estudo. Contudo, excetuando-se o Al, todos os demais metais estudados apresentaram, nas condições deste estudo, mobilidade nos perfis solo-rocha estudados. O que indica a possibilidade de ocorrer entrada desses elementos em outros compartimentos ambientais da área, tais como água, sedimentos, vegetação;

✓ De uma maneira geral, durante os processos de intemperismo e pedogênese, o solo dos perfis:

- constituídos por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado (CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05) apresentaram, em geral, um relativo enriquecimento em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn, Cd, Co, Ni e Pb;

- constituído por Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito (CAE-04) ocorreu enriquecimento em ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn e Pb;

- constituído por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss (CAE-06) foi enriquecido em ^{238}U , ^{232}Th , Mn, Ni, Cu e Pb

- constituído por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito (CAE-07) foi enriquecido em ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn e Cu;

✓ Considerando a mobilidade sazonal dos elementos estudados no solo, verificou-se que, de uma maneira geral, os radionuclídeos e elementos que apresentaram mobilidade vertical nos perfis solo-rocha estudados foram:

- ^{238}U , ^{232}Th , Fe, Mn, Cd, Co, Ni, Cu e Pb nos perfis de Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito albitizado (CAE-01, CAE-02, CAE-03 e CAE-05);

- ^{238}U , ^{232}Th , Mn e Fe no perfil de Neossolo Litólico desenvolvido sobre Sienogranito (CAE-04);

- ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Cu e Pb no perfil de Neossolo Regolítico desenvolvido sobre *Augen* Gnaiss (CAE-06);

- ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , Fe, Mn, Co, Cu e Pb no perfil solo-rocha composto por Neossolo Regolítico desenvolvido sobre Granodiorito (CAE-07);

- ✓ A mobilidade sazonal dos radionuclídeos e metais pesados estudados foi devida, principalmente aos processos de perda (dissolução, lixiviação, eluviação) e ganho (iluviação, decaimento radioativo, formação de novos compostos, precipitação, complexação, adsorção, fixação em fases minerais hospedeiras) que ocorreram em consequência do ambiente ácido e oxidante do solo, da presença destes radionuclídeos e elementos no solo, da presença de argilominerais, colóides orgânicos e carbonatos, e pela entrada de água nos solos por ocasião da estação chuvosa;
- ✓ O valor da dose efetiva anual variou entre 2,18 a 73,79 mSv.ano⁻¹, na estação seca, e entre 1,79 a 64,92 mSv.ano⁻¹, na estação chuvosa, o que a caracteriza como de alta exposição natural, e classifica esta área localizada no município de São José de Espinharas (PB), como uma das regiões de elevado nível de radiação natural da Terra
- ✓ Considerando o fato de que a área estudada pode ser classificada como de alta exposição natural, conforme os dados obtidos neste estudo, e que a área é urbanizada, todas as formas de uso e ocupação do solo devem considerar os riscos potenciais a eles associados e, desta forma, serem elaboradas medidas que minimizem esses riscos.

5.2 CONTRIBUIÇÃO DO ESTUDO PARA PESQUISAS FUTURAS

A partir dos resultados obtidos neste estudo e que servem de subsídios para avaliação do uso e ocupação da área estudada, alguns pontos merecem destaque para serem investigado em estudos posteriores. Abaixo serão feitas breves considerações a esse respeito.

- ✓ Os solos da área estudada são rasos ou pouco profundos, com textura arenosa e porosidade constituída, basicamente, por macroporos. As rochas são enriquecidas em ²³⁸U e ²³²Th, o que facilita a ocorrência de processos radioativos de geração, emissão, migração e exalação do ²²²Rn. Dessa forma, esses processos devem ser investigados, considerando-se as condições climáticas e o regime hídrico do aquífero freático;

- ✓ Considerando que os solos da área estudada são relativamente jovens e ainda sujeitos aos processos de intemperismo, possuem concentrações de radionuclídeos como ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K , e são solos cobertos por vegetação do tipo caatinga hipoxerófila com espécies vegetais utilizadas como forrageira pelos habitantes locais, estudos mais detalhados devem ser efetuados de forma a investigar processos de transferência (solo-planta-animal) ou entrada dos radionuclídeos citados na cadeia alimentar;
- ✓ Na área estudada, ocorrem muitos açudes e reservatórios de água que são utilizados pela população local. Como há predominância de solos de textura arenosa que facilitam a lixiviação de cátions, metais pesados e, eventualmente, radionuclídeos, a água desses aquíferos superficiais, assim como o sedimento de fundo, devem ser investigados com relação ao conteúdo e disponibilidade desses elementos;
- ✓ Considerando todos os riscos potenciais que envolvem uma área com elevados níveis de radiação ambiental, estudos epidemiológicos e geoquímicos integrados devem ser conduzidos, a fim de avaliar os reais riscos para os habitantes locais associados à presença dos radionuclídeos ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K , ^{226}Ra e ^{222}Rn nos vários componentes do ambiente (solo, vegetação, sedimento, água) da área de mineralização em U de São José de Espinharas;
- ✓ Todas as informações produzidas acerca dos itens acima listados, devem ser integradas para definição de um zoneamento da área, baseado em critérios ambientais multidisciplinares, que permitam a elaboração de um planejamento para uso e ocupação adequados.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

Adams, J.A.S.; Weaver, C.E. 1958. Thorium to uranium ratios as indications of sedimentary processes: example of concept of geochemical facies. *American Association of Petroleum Geologists Bulletin*, v. 42, 387-430.

AECB. Atomic Energy Control Board. 1995. *Canadá: living with radiation*. Info -9999-6 (E), Communications Group, Ottawa, Canada.

Aieta, E.M., Singley, J.E., Trussel, A.R., Thorbjarnarson, K.W., McGuire, M.J. 1987. Radionuclides in drinking water: an overview. *Journ. Amer. Water Works Association*, 79: 144-152.

Alencar, A.S. 2003. Mapeamento da radioatividade ambiental em praias arenosas da Ilha Grande, Rio de Janeiro – Brasil. *Tese de Doutorado*, UERJ / Biociências Nucleares, Rio de Janeiro. 158p.

Allison, L.E.; Bollen, W.B. & Moodi E, C.D. 1965. Total carbon. In: BLACK, C.A. (ed.), *Methods of soil analysis*. American Society of Agronomy, Madison, . pt. 2, p.1346-1366.

Alloway, B.J. 1990. *Heavy metals in soils*. Willey, New York. 339p.

Almeida, F.F.M., Hasui, Y., Brito Neves, B.B. E Fuck, R.A. 1977. Províncias estruturais brasileiras. In: *Simpósio de Geologia do Nordeste*, 8. SBG/NE, Campina Grande, Paraíba. p. 363-391.

Amaral, E.C.S. 1992. Modificação da exposição à radiação natural devido a atividades agrícolas e industriais numa área de radioatividade natural elevada no Brasil. *Tese de Doutorado*. UERJ / Biofísica, Rio de Janeiro. 147p.

Amaral, R.S. 1994. Dose na população da região urano-fosfática pernambucana, devida à presença de Urânio e ²²⁶Ra nos cultivares. *Tese de Doutorado*. IPEN/ Tecnologias Energéticas e Nucleares, São Paulo. 143p.

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

Arya, A. P. 1966. *Fundamentals of Nuclear Physics*. Allyn and Bacon Inc, Boston.

Attendorn, H.G., Bowen, R.N.C. 1997. *Radioactive and stable isotope Geology*. Chapman & Hall, New York, 522p.

Barona, A.; Romero, F. 1996. Distribution of metals in soils and relationships among fractions by principal component analysis. *Soil Technology*, v. 8, p. 303-319.

Barrow, N.J. 1985. Reactions of anions and cations with variable-charge soils. *Adv. Agronomy*, 38:183-230.

Basta, N.T., Tabatabai, M.A. 1992. Effect of cropping systems on adsorption of metals by soils: II. Effect of pH. *Soil Science*, 153:195-204.

Baver, L.D.; Gardner, W.H.; Gardner, W.R. 1972. *Soil physics*. John Wiley & Sons, New York. 498p.

Becegato, V.A.; Ferreira, V.F.J.F. 2005. Gamaespectrometria, resistividade elétrica e susceptibilidade magnética de solos agrícolas no nordeste do Estado do Paraná. *Brazilian Journal of Geophysics*, vol. 23(4), p. 371-405.

Benton, R.S. 2000. Riscos de contaminação do agroecossistema com metais pesados. In:

Bettiol, W. & Camargo, O.A.. Impacto ambiental do uso agrícola do lodo de esgoto. *Embrapa Meio Ambiente Jaguariúna*, cap. 16, 259 – 267.

Besoain, E.1985. *Mineralogia de arcillas de suelos*. IICA, Costa Rica.1205 p.

BGS. British Geological Survey. 1991. *Regional geochemical atlas series*. Grampians. British Geological Survey, Keyworth. 95p.

Bittencourt, A.V.L. 1998. *Geoquímica ambiental: notas de aulas*, UFPR, Curitiba.

Bonotto, D.M. 1996. Comportamento hidrogeoquímico do ^{222}Rn e isótopos de urânio ^{238}U em ^{234}U sob condições controladas de laboratório e em sistemas naturais. *Tese Livre Docência em Geoquímica*. UNESP / Instituto de Geociências e Ciências Exatas Rio Claro, 223p.

Bonotto, D.M. 2004. *Radioatividade nas águas: da Inglaterra ao Guarani*. UNESP, São Paulo. 251p.

Bowie, S.H.U.; Plant, J.A. 1983. Natural radioactivity in the environment. In: Thornton, I. (Ed.). *Applied environmental geochemistry*. Academic Press, . London. 501p.

Brady, B. 1979. *Natureza e propriedade dos solos*. Freitas Bastos, Rio de Janeiro. 647p.

Calas, G. 1979. Etude experimentale du comportement de l'uranium dans les magmas: Etats d'oxydation et coordinance. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 43: 1521-1532.

Campos, M.P. 1999. Torônio no ar: avaliação da dose ocupacional. *Tese de Doutorado*. USP / Tecnologia Nuclear, São Paulo. 118p.

Cardoso, E.M.; Alves, I.P.; Lima, J.M.; Tahuata, L.; Heilbron Filho, P.F.; Braz, C.; Pestana, S. 2002. Radioatividade. CNEN, Rio de Janeiro. 19p.

Carvalho, I.G.1995. *Fundamentos da geoquímica dos processos exógenos*. Bureau, Salvador. 239p.

CETESB. Companhia de Tecnologia de Saneamento Ambiental. 2005. *Decisão de Diretoria Nº 195-2005- E*, de 23 de novembro de 2005. Dispõe sobre a aprovação dos Valores Orientadores para Solos e Águas Subterrâneas no Estado de São Paulo – 2005, em substituição aos Valores Orientadores de 2001, e dá outras providências. 4p.

CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear, 1988. *CNEN - NE-3.01, 1988 – Diretrizes Básicas de Radioproteção*, Rio de Janeiro: DOU de 1 de agosto de 1988.

CNEN – Comissão Nacional de Energia Nuclear Comissão Nacional de Energia Nuclear, 1998. *CNEN - NE-6.02, 1998 – Licenciamento de Instalações Radiativas*, Rio de Janeiro : DOU de 08 de junho de 1998.

CPRM. Serviço Geológico do Brasil. 2002. *Geologia e recursos minerais do estado da Paraíba*. Org. [por] Santos, E.J.; Ferreira, C. A. e Silva Junior, J.M. Recife, 142p. Il. 2 mapas. Escala 1:500.000.

CPRM. Serviço Geológico do Brasil. 2005. *Projeto cadastro de fontes de abastecimento por água subterrânea. Diagnóstico do município de São José de Espinharas, estado da Paraíba*. Organizado [por] Mascarenhas, J.C.; Beltrão, B.A.; Souza Junior L.C.; Moraes, F.; Mendes, V.A.; Miranda, J. L. F. CPRM/PRODEEM, Recife.10 p. + anexos.

Cocco, G.; Fanfani, L.; Zanazzi, P.E. 1969. Potassium. In: Wedepohl, K.H. (Ed.). *Handbook of Geochemistry*. New York: Springer-Verlag, v.2, cap. 19.

Conceição, F. T. 2004. Comportamento geoquímico de radionuclídeos e metais pesados em solos da bacia do Rio Corumbataí – SP. *Tese de Doutorado*. : UNESP, Rio Claro. 146p.

Costa, W.C. 2003. Seleção de biomassas para o estudo da bioissorção dos radionuclídeos ^{226}Ra e ^{137}Cs . *Tese de Doutorado*. UNESP / Biotecnologia, Rio Claro. 98p.

Crawley, R.A. 1983. Sandstone uranium deposits in the United States: a review of the history, distribution, genesis, mining areas and outlook. Colorado: U. S. Department of Energy. 57p. (*Technical Report*).

Centro de Previsão de Tempo e Estudos Climáticos (CPTEC). Instituto Nacional de Pesquisas Espaciais (INPE). *Programa de Monitoramento Climático em Tempo Real da Região Nordeste*. Disponível em: http://www.cptec.inpe.br/proclima2/balanco_hidrico/balancohidrico.shtml. Acesso em: 20 de agosto de 2007.

Cowart, J.B.; Osmond, J.K. 1974. ^{234}U and ^{238}U in the carrizo sandstone aquifer of south Texas. In: Symposium on Isotope Techniques in Groundwater Hydrology. Vienna. *Proceedings...* Vienna: IAEA, v. 2. p. 131-149.

Dalrymple, G.B.; Lanphere, M. 1969. *Potassium-argon dating - Principles, techniques and applications to geochronology*. Freeman, San Francisco.

Dantas, I.C. 2002. *Plantas medicinais comercializadas no município de Campina Grande, PB*. UEPB, Paraíba. 13p.

DAY, P.R. 1965 Particle fractionation and particle-size analysis. In: Black, C.A. (Ed). *Methods of soil analysis*. Madison: American Society of Agronomy and American Society for Testing and Materials, pt.1. p.545-567.

Dean Júnior, W.E. 1974. Determination of carbonate and organic matter in calcareous sediments and sedimentary rocks by loss on ignition: comparison with other methods. *Journal of Sedimentary Petrology*, vol. 44, nº 1. p. 242-248.

Dickin, A.P. 1995. *Radiogenic isotope Geology*. Cambridge Univ. Press. 477 p.

Dickson B.I.; Scott, K. M. 1997. Interpretation of aerial gamma-ray surveys – adding the geochemical factors. *AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics*, Australia, 17(2): 187–200.

DNPM (Departamento Nacional de Produção Mineral) / CNEN (Comissão Nacional de Energia Nuclear) / CPRM (Serviço Geológico do Brasil). 1973. *Projeto Seridó – Levantamento aerogeofísico (magnetometria e cintilometria com discriminação de energia)*. Relatório final, texto e anexos. Lasa/CPRM, Rio de Janeiro. 103p.

Duarte, C. R. 2002. Radioelementos naturais na área do projeto Rio Preto (GO). *Tese de Doutorado*. UNESP, Rio Claro. 179p.

ECRP (European Commission Radiation Protection). 1999. Report on radiological protection principles concerning the natural radioactivity of building materials. *Radiation Protection 112*.

EMBRAPA. Empresa Brasileira de Pesquisa Agropecuária. 1972. *Levantamento exploratório – reconhecimento de solos do estado da Paraíba*. Rio de Janeiro: EMBRAPA Solos- UEP Recife. Escala 1: 250.000.

EMBRAPA. Empresa Brasileira de Pesquisa Agropecuária. Centro Nacional de Pesquisa de Solos. 1979. *Manual de Métodos de Análise de Solos*. Embrapa Solos, Rio de Janeiro.

EMBRAPA. Empresa Brasileira de Pesquisa. Centro Nacional de Pesquisa de Solos. 1999. *Sistema Brasileiro de Classificação de Solos*. Embrapa Solos, Rio de Janeiro. 412p.

Erdtmann, G.; Soyra, W. 1979. *The gamma of the radionuclides: tables for applied gamma ray spectrometry*. V.7., Verlag Chemie. New York. 862p.

Fadigas, F. S; Amaral-Sobrinho, N.M.B.; Mazur, N.; Anjos, L.H.C.; Freixo, A. A. 2002. Concentrações naturais de metais pesados em algumas classes de solos brasileiros. *Bragantia*. Campinas v. 6.

Fassbender, H.W.; Bornemisza, E. 1987. *Química de suelos con énfasis en suelos de América Latina*. IICA, San José, Costa Rica. 420p.

Fisher, R.S. 1998. Geologic and Geochemical Controls on Naturally Occurring Radioactive Materials (NORM) in Produced Water from Oil, Gas and Geothermal Operations. *Environmental Geosciences*, 5 (3): 139-150.

Ford, R.G.; Scheinost, A.C.; Sparks, D.L. 2001. Frontiers in metal sorption/precipitation mechanisms on soil mineral surfaces. *Advances in Agronomy*, v. 74, p. 41-62.

Forman, J.M.A. 1978. Urânio no Brasil sua busca e resultados. In: *Congresso Brasileiro de Geologia*, 30. 1978, Recife. *Palestra...* Recife, 1978. 106p.

Fuger, J.; Oetting, F.L. 1976. *The chemical thermodynamics of actinide elements and compounds. Part 2 – The actinide aqueous ions*. Vienna: IAEA. p. 16-60.

Ghiassi-Nejad, M.; Beitollahi, M.M.; Fallahian, N.; Amidi, J.; Ramezani, H. 2001. Concentrations of natural radionuclides in imported mineral substances. *Environmental International*. v.26, p. 557-560.

Goldschmidt, V.M. 1945: The geochemical background of minor elements distributions. *Soil Science*, 60: 1-7.

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

Govett, G.J.S. 1983. *Handbook of exploration Geochemistry*. Vol. 3, Rock Geochemistry in Mineral Exploration. Amsterdam, Elsevier Scientific Publishing Company. 461p.

Granier, C.L. 1973. *Introduction a la prospection géochimique des gîtes métallifères*. Masson et Cie., Paris, 143 p.

Grant, J.A. 1986. The ISOCON diagram – a simple solution to Gresens' equation for metasomatic alteration. *Economic Geology*, v.81, p. 1976-1982.

Grasty, R.L. , Carson, J.M., Charbonneau, B.W. & Holman, P.B. 1984. Natural background radiation in Canada. *Geol. Survey Canada Bull.* (360), 39 p.

Greenwood, N.N.; Earnshaw, A. 1989. *Chemistry of the elements*. University of Leeds, 1542p.

Guilherme, L.R.G.; Marques, J.J.; Pierangeli, M.A.P.; Zuliane, D.Q.; Campos, M.L. 2005. Elementos-traço em solos e sistemas aquáticos. *Tópicos em Ciência do Solo*, v. 4, p. 345-390.

Guimond, R. J. 1978. The radiological aspects of fertilizer utilization radioactivity in consumer products. *US Nuclear Regulatory Commission*. Washington. p. 380-392.

Guthrie, V.A.; Kleeman, J. D. 1986. Changing uranium distributions during weathering of granite. *Chemical Geology*, 54: 113-126.

Hayes, K.F.; Traina, S.J. 1998. Metal speciation and its significance in exosystem health. In: Huang, P.M. (ed.). *Soil chemistry and ecosystem health*. Madison, Soil Science Society of America, p. 45-84 (Special Publication, 52).

Heier, K.S.; Billings, G.K. 1969. Potassium. In: Wedepohl, K.H. (Ed.). *Handbook of Geochemistry*. New York: Springer-Verlag, v.2, cap. 19.

Hiodo, F.Y. 1989. Desenvolvimento de instrumentação em geofísica nuclear e sua aplicação no Morro do Ferro. *Tese de Doutorado em Geofísica*, USP/Instituto Astronômico e Geofísico, São Paulo, 177p.

Holleman, A.F., Wiberg, E. 1960. *Lehrbuch der anorganischen chemie*. Walter de Gruyter, Berlin. 703p.

Hoyt, P.B.; Turner, R.C. 1975. Effects of organic materials added to very acid soils on pH, aluminum, exchangeable NH_4 , and crop yields. *Soil Science*, 119:227-237.

IAEA-ICRP (International Atomic Energy Agency – International Commission on Radiological Protection). 1990. *Recommendations of the International Commission on Radiological Protection*. ICRP Pub. 60. Pergamon Press, Oxford..

IAEA-ICRP (International Atomic Energy Agency – International Commission on Radiological Protection). 2003. *Guidelines for radioelement mapping using gamma ray spectrometry data*. IAEA-TECDOC-1363. 158p.

IBGE. Fundação Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística. 2000. *Resultados da amostra do Censo Demográfico 2000– Município de São José de Espinharas (PB)*. IBGE, Rio de Janeiro.

INCRA-PB. 2002. *Mapa de solos e de localização das sub-bacias da bacia do Rio Espinharas-PB*. 120 p.

INMETRO. Instituto Nacional de Metrologia, Normalização e Qualidade Industrial. 2007. *Orientação sobre validação de ensaios químicos*. DOQ-CGCRE-008. 25p.

IPEN. Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares. 2006. *Interação da radiação com a matéria: escala do tempo*. São Paulo: IPEN. 27p.

IRD (Instituto de Radioproteção e Dosimetria) – CNEN (Comissão Nacional de Energia Nuclear). 2000. Radioatividade natural: tecnologia humana aumenta risco de exposição. *Ciência Hoje*, p. 36-41.

Ivanovich, M.; Harmon, R.S. 1992. *Uranium series disequilibrium: applications to earth, marine and environmental sciences*. Oxford: Carendon Press.

Jackson, M. L. 1964. Chemical composition of soils. In: Bear, F.E.(ed.) *Chemistry of the soil*. 2 ed., Reinhold, New York. p. 71-141.

Javaroni, J.H.; Maciel, A.C. 1985. Prospecção e pesquisa de urânio no Brasil: atuação da Nuclebrás (1975–1984). In: Schobbenhaus Filho, C. *Principais Depósitos Minerais do Brasil*. DNPM, Rio de Janeiro, v.1, p. 81 – 87.

Jaworowski, W. 1990. Sources and the global cycle of radium. In: The environmental behavior of radium. IAEA, Viena, p. 129-142 (IAEA – Technical Report Series, 310).

Jorge, J.A. 1980. Eficácia de métodos de oxidação de matéria orgânica do solo para análise granulométrica. *Revista Brasileira de Ciência do Solo*, Campinas, 4:118-121.

Kabata-Pendias, A. & Pendias, H. 2001. *Trace elements in soils and plants*. 3.ed. CRC Press, Boca Raton. 413p.

KAMPF N & KLAMT E. 1978. Mineralogia e gênese de Latossolos (Oxisols) e solos Podzólicos da região nordeste do Planalto Sul-Riograndense. *Revista Brasileira de Ciência do Solo*, 2: 68–73.

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

Koljonen, T. 1992. *The geochemical atlas of Finland*. Geological Survey of Finland,

Krallik, M. 1999. A rapid procedure for environmental sampling and evaluation of polluted sediments. *Applied Geochemistry*, 14. p. 807-816.

Krauskopf, K.B.; Bird, D.K. 1995. *Introduction to geochemistry*. 3.ed., New York: McGraw-Hill. 647p.

Ku, T.L. 1976. The uranium - series methods of age determination. *An. Rev. Earth Plan. Sci.* Elsevier Science v.4, p. 347 – 79.

Langmuir, D. 1978. Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 42: 547-569.

Langmuir, D.; Herman, J.S. 1980. The mobility of thorium in natural waters at low temperatures. *Geochimica Cosmochimica Acta*, v.44, p.1753 – 66.

Lauria, D.C.; Martins, N.S.F.; Zenaro, R. 2003. *Monitoração ambiental*. Rio de Janeiro: IRD-CNEN. 87p.

Lepsch, I. F. 2002. *Formação e conservação dos solos*. Oficina de Textos, São Paulo. 178p.

Licht, O.A.B. 2001. A geoquímica multielementar na gestão ambiental: identificação e caracterização de províncias geoquímicas naturais, alterações antrópicas da paisagem, áreas favoráveis à prospecção mineral e regiões de risco para a saúde no estado do Paraná, Brasil. *Tese de Doutorado*. UFPR/Geologia, Curitiba. 236p.

Licínio, M.V.S. 2002. Mapeamento da radioatividade ambiental do estado do Rio de Janeiro: níveis de referência, dosimetria externa e correlações com parâmetros ambientais e urbanísticos. *Dissertação de Mestrado*, UERJ / Biociências Nucleares, Rio de Janeiro. 100p.

Lima, R.A. 1996. Avaliação da dose na população da região urano-fosfática do Nordeste que utiliza os recursos hídricos da região. *Tese de Doutorado*, USP/Tecnologia Nuclear, São Paulo: 178p.

Lindsay, W. L. 1979. *Chemical equilibria in soils*. John Wiley & Sons, New York. 449p.

Lottermoser, B.G.; Ashley, P.M.; Costello, M.T. 2005. Contaminant dispersion at the rehabilitated Mary Kathleen uranium mine, Australia. *Environmental Geology*, 14p.

Lund, Z.F.; Doss, B.D. 1980. Residual effects of dairy cattle manure on plant growth and soil properties. *Agronomy Journal*. 72:123-130.

MacBride, M. B. 1994. *Environmental soil chemistry*. Oxford Press, New York. 406p.

Majdalani, S. 1999. Crescem as reservas brasileiras de urânio. *Revista Brasil Nuclear*, 18. p.22.

Malanca, A.; Pessina, V.; Dallara, G. 1993. Radionuclide content of building materials and gamma ray dose rates in dwellings of Rio Grande do Norte, Brazil. *Radiation Protection Dosimetry* 48: 199-203.

Malanca, A.; Pessina, V.; Dallara, G. 2004. 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.

Mason, B.; Moore, C.B. 1982. *Principles of Geochemistry*. Fourth Edition. John Wiley & Sons, New York. 344p.

Mcbride, M. B. . 1994. *Environmental soil chemistry*. Oxford Press, New York. 406p.

McLaren, R.G., Backes, C.A., Tate, A.W., Swift, R.S. 1998. Cadmium and cobalt desorption kinetics from soil clays: Effect of sorption period. *Soil Science Society of American*, 62:332-337.

Medina, H.P. & Grohmann, F. 1962. Contribuição ao estudo da análise granulométrica do solo. In: *Anais do 6º Congresso Brasileiro de Ciência do Solo*, Sociedade Brasileira de Ciência do Solo, Salvador. p.29-38.

Melfi, A. J. ; Pedro, G. 1978. Estudo geoquímico dos solos e formações superficiais do Brasil – considerações sobre os mecanismos geoquímicos envolvidos na alteração superficial e sua repartição no Brasil. *Revista Brasileira de Geociências*, v. 8, São Paulo.

Menzel, R.G. 1968. Uranium, radium and thorium content in phosphate rocks and their possible radiation hazard. *Journal Agronomy Food Chemic*, 16: 231-284.

Michel, J. 1984. Redistribution of uranium and thorium series isotopes during isovolumetric weathering of granite. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 48: 1249-1256.

Ministério da Educação. INEP - Instituto Nacional de Estudos e Pesquisas Educacionais. 2006. *Censo educacional 2005 – Município de São José de Espinharas (PB)*. IBGE, Rio de Janeiro.

Ministério da Saúde. DATASUS – Departamento de Informática do Sistema Único de Saúde. 2006. *Malha municipal digital do Brasil: situação em 2005– Município de São José de Espinharas (PB)*. IBGE, Rio de Janeiro.

Modaihsh, A.S., Horton, R., Kirkham, D. 1985. Soil water evaporation suppression by sand mulches. *Soil Science*, v. 139, p. 51-59.

Mortvedt, J.J. 1986. Effects of calcium silicate slag application on radium-226 concentrations in plants tissues. *Communication in Soil Science and Plant Analysis*. 17:75-84.

Moore, H. E.; Poet, S.E. 1976. ^{210}Pb fluxes determined from ^{210}Pb and ^{226}Ra soil profiles. *Journal of Geophysical Research*, v. 81, n. 6, p. 1056-1058.

Munsell Color Company. 1994. *Munsell soil colors charts*, Baltimore, Maryland USA. 16p.

Naidu, R.; Bolan, N.S.; Kookana, R.S.; J.G, Tiller. Ionic strength and pH effects on surface charge of Cd sorption characteristics of soils. 1994. *Journal of Soil Science*, v. 45, p. 419-429.

Nascimento, C.T.C. 2003. Resistividade elétrica e radiação gama natural no estudo de solos sob cerrado nativo. *Tese de Doutorado*. UnB, Brasília. 111p.

Nash, J.T., Granger, H.C., Adams, S.S. 1981. Geology and concepts of genesis of important type of uranium deposits. *Econ. Geol.*, v. 75, p. 63 – 116.

Neves, L.J.P.F; Pereira, A.J.S.C.; Godinho, M.M.; Dias, J.M.M. 1996. A radioatividade das rochas como um fator de risco ambiental no território continental português: uma síntese. In: Borrego, C.; Arroga, L.; Figueiredo, E. (Eds.). *V Conferência sobre a qualidade do ambiente*, vol. I. p. 641-649.

Oliveira, J.B. 2005. *Pedologia aplicada*. FESALQ, Piracicaba. 574p.

Oliveira, J.E. 2006. Implicações de radioelementos no meio ambiente, agricultura e saúde pública em Lagoa Real, Bahia, Brasil. In: Silva, C.R.; Figueiredo, B.R.; Capitani, E.M.; Cunha, F.G. (Ed.) 2006. *Geologia médica no Brasil*. CPRM, Rio de Janeiro. p. 148-156.

Oliveira, F.C.; Mattiazzo, M.E. 2001. Mobilidade de metais pesados em um latossolo amarelo distrófico tratado com lodo de esgoto e cultivado com cana-de-açúcar. *Scientia Agrícola*. Piracicaba. v. 58, n. 4, , 10 p.

Oliver, M. A. 1997. Soils and human health: a review. *European Journal Soil Science*, 48:573-592.

Panayiotopoulos, K.P., Mullins, C.E. 1985. Packing of sands. *Journal os Soil Science*, vol. 36, p. 129-139.

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

Pascholati, E.M., Amaral, G., Osako, L.S. 1997. Environmental radiation patterns of the Lagoa Real Uranium District, Bahia, Brasil. In: *V Cong. Intern. Soc. Bras. Geofísica*, p. 406-407.

Pereira, A. J.S.C.; Neves, L.J.P.F.; Godinho, M.M.; Dias, J.M.M. 1999. O gás radão em solos da região central de Portugal: um factor a considerar para o ordenamento do território. In: *VI Conferência sobre a Qualidade do Ambiente*. Vol. II. P. 763-772.

Pereira, A. J.S.C.; Neves, L.J.P.F. 2003. Geologia e radioactividade natural na região das Beiras. In : *XXII Curso de actualização de professores de Geociências*. Coimbra: Associação Portuguesa de Geólogos, 6 p.

Pfister, R. J.; Phillipp, G.; Pauly, H. 1976. Population dose from natural radionuclides in phosphate fertilizers. *Radiation and Environmental Biophysics*.13: 247-261.

Plant, J.A.; Raiswell, R. 1983. Principles of environmental geochemistry. In: Thornton, I. (Ed.). *Applied environmental geochemistry*. London: Academic Press. P. 1-38. (Geology Series).

Pszonicki, L. Hanna, A.N., Suschny, O. 1984. *Report on the intercomparison run IAEA-Soil 7: trace elements in soil*, IAEA/RL/112, IAEA, Viena, Austria.

Rebelo, A.M.A., Bittencourt, A.V.L., Mantovani, L.E. 2002. Anomalias geoquímicas de U e de Th, solos residuais e geoformas em paisagens tropicais úmidas sobre granito. *Boletim Paranaense de Geociências*, n. 51, p. 33-44.

Rebello, A.M.A., Bittencourt, A.V.L., Mantovani, L.E., Rossi, T.B. 2003. Pedogeochemical models on prognosis and control of radon fluxes from humid tropical landscapes over granite. *Environmental Geology*, 44:158-168.

Reimann, C., Caritat, P. 1998. *Chemical elements in the environment : factsheets for the Geochemist and environmental scientist*. Springer Verlag, Berlin. 396p.

Ring, R. J. 1977. Recovery of byproduct uranium from of manufacture of phosphate fertilizers. *Atomic Energy*. p. 12-20.

Rio, M.A.P. 1999. A indústria de mineração e o aumento da exposição à radiação natural. *Tese de Doutorado*, UERJ /Biociências Nucleares, Rio de Janeiro. 130p.

Ródenas, J.; Pascual, A.; Zarza, I.; Serradell, V.; Ortiz, J.; Ballesteros, L. 2003. Analysis of the influence of germanium dead layer on detector calibration simulation for environmental radioactive samples using the Monte Carlo method. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research*. v. 496, p. 390-399.

Rogers, J.J.W.; Adams, J.A.S. 1969a. Thorium. In: Wedepohl, K.H. (Ed.) *Handbook of Geochemistry*. Springer-Verlag, New York, v.4, cap. 90.

Rogers, J.J.W.; Adams, J.A.S. 1969b. Uranium. In: Wedepohl, K.H. (Ed.). *Handbook of Geochemistry*. Springer-Verlag, New York, v.4, cap. 92.

Rohde, G.M. 2004. *Geoquímica ambiental e estudos de impacto*. 2. ed., Signus, São Paulo. 157p. il.

Rose, A.W.; Hawkes, H.E.; Webb, J.S. 1979. *Geochemistry in mineral exploration*. 2ed., Academic Press, New York.

- Rösler, H.J.; Lange, H. 1972. *Geochemical tables*. New York: Elsevier. 468p.
- Rosholt, I.N.; Doe, B.R.; Tatsumoto, M. 1966. Evolution of isotopic composition of uranium and thorium in soil profiles. *Geo. Soc. Am. Bull.* 77: 987-1004.
- Ross, J. L. S. *Geomorfologia: ambiente e planejamento*. São Paulo: Contexto. 88p.
- Sachett, J.A.; & Conti, C.C. (Coord.). 2006. *Atuação da divisão na preparação e resposta a uma situação de acidente nuclear ou emergência radiológica*. IRD, Rio de Janeiro.
- Santos, L.C.S.; Anacleto, R. 1985. Jazida de urânio de Espinharas, Paraíba. In: Schobbenhaus Filho, C. *Principais Depósitos Minerais do Brasil*. DNPM, Rio de Janeiro, v.1, p.143 – 155.
- Santos, E. E., Lauria, D. C.; Amaral, E. C. S., Rochedo, E. R. 2002. Daily ingestion of ^{232}Th , ^{238}U , ^{226}Ra , ^{228}Ra and ^{210}Pb in vegetables by inhabitants of Rio de Janeiro city. *Journal of Environmental Radioactivity*, 652: 5-86.
- Santos Júnior, J.A. 2005. Migração de urânio e rádio –226 no solo em torno da ocorrência uranífera do município de Pedra-PE.. *Dissertação de Mestrado*. Programa de Pós-Graduação em Tecnologias Energéticas e Nucleares, DEN/UFPE, Recife, 89p.
- Santos, R.D., Lemos, R.C., Santos, Ker, J.C., Anjos, L.H.C. 2005. *Manual de descrição e coleta de solo no campo*, 5.ed., Sociedade Brasileira de Ciência do Solo, Viçosa-MG. 92p.
- Selby, M.J. 1993. *Hillslope materials and process*. 2. ed. Oxford University. 451p.
- Selinus, O. 2006. Geologia médica. In: Silva, C.R.; Figueiredo, B.R.; Capitani, E.M.; Cunha, F.G. (Eds.). *Geologia médica no Brasil*, CPRM, Rio de Janeiro, p. 1-5.
- Selvasekarapandian, S.; Manikandan, N. M.; Sivakumar, R.; Balasubramanian, S.; Vienkatesan, T.; Meenakshisundaram, V.; Gajendran, V. 1999. Gamma radiation dose from radionuclides in soil samples of Udagamandalam (Ooty) India. *Radiation Protection Dosimetry*, v. 82, n.3, p.225-228.
- Shenber, M.A. 1997. Measurement of natural radioactivity levels in soil in Tripoli. *Applied Radiation and Isotopes*.v. 48, p. 147-148.
- Short, S. A., Lawson, R. T. , Ellis, J., Price, D. 1989. Thorium-uranium disequilibrium dating of late Quaternary ferruginous concretions and rinds. *Geochimica Cosmochimica Acta*, 53: 1379-1389.
- Silva, I.C.M. 1997. Determinação da concentração de radônio, torônio e filhos no ar em uma indústria que utiliza o nitrato de tório. *Dissertação de Mestrado*, IME / Engenharia Nuclear, Rio de Janeiro. 69p.
- Silva, H.E. 1998. O emprego do radônio na caracterização de fenômenos de transporte e impacto ambiental atmosférico na Ilha Rei George (Antártica). *Tese de Doutorado*, UERJ / Biociências Nucleares, Rio de Janeiro.198p.

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

Simonson, R.W. 1959. Modern concepts of soil genesis. A symposium outline of a generalized theory of soil genesis. *Proceedings Soil Science American*. 23:152-156.

Smith, D. M., Kemball, P., 1998 "Regulatory Control and Norm – The UK Position". In: Proceedings of the NORM II Second International Symposium, pp. 178-182, Krefeld.

Sparks, D.L. 1995. *Environmental soil chemistry*. Academic Press, p. 22-51.

Soares, M.R. 2004. Coeficiente de distribuição (K_D) de metais pesados em solos do Estado de São Paulo. *Tese de Doutorado*, ESALQ, Piracicaba. 214p.

Souza Neto, J. A. 2004. Avaliação da ligação metalogenética entre mineralizações de Au, Fe, Cu, U, ETR, Ti e P associadas a terrenos arqueanos-paleoproterozóicos. *Relatório parcial de projeto de pesquisa – Programa Enxoval –PROPESQ – UFPE* (Proc. N° 23076.009315/2002-12). 26p.

Souza, J.L. 1998. Anomalias aerogamespectométricas (K, U e Th) da quadrícula de Araras (SP) e suas relações com processos pedogenéticos e fertilizantes fosfatados. *Dissertação de Mestrado*. UFPR / Geologia, Curitiba. 260p.

Souza, S.R.C. 2004. Mapeamento geológico na Área da Mineralização de U-ETR de São José de Espinharas (PB). Recife, DGEO/UFPE. *Relatório final de graduação*, mapas e anexos. 107 p.

Sujo, L.C.; Cabrera, M.E.M.; Villalba, L.; Villalobos, M.R.; Moye, E.T.; León, M.G.; Garcia, F. M.; Peraza, E. F. H.; Aroche, D. S. 2004. Uranium-238 e thorium-232 series concentrations in soil, radon-222 indoor and drinking water concentrations and dose assessment in the city Aldama, Chihuahua, Mexico. *Journal of Environmental Radioactivity*. v. 77, p. 205-219.

Sutherland, R. S. 2002. Comparison between non-residual Al, Co, Cu, Fe, Mn, Ni, Pb and Zn release by a three-step sequential extraction procedure and a dilute hydrochloric acid leach for soil and road deposited sediment. *Applied Geochemistry*, 17. p. 353-365.

Tzortzis, M., Tsertos, H., Christofides, S., Christodoulides, G. 2003. Gamma-ray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic rocks.. *Radiation Measurements*, v. 37, p.221-229.

UNSCEAR(United Scientific Committee Ionizing Radiation). 2000, "Sources and Effects of Ionizing Radiation", United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Report to the General Assembly with Scientific Annexes, Volume I: Sources, Nova York.

US EPA (Environmental Protection Agency United State). 1996. *Method 3052*. Microwave assisted acid digestion of siliceous and organicaloly based matrices. 20p.

US EPA (Environmental Protection Agency United State). 1998 *Test method 3051A*. Microwave assisted acid digestion of sediments, sludges, soil and oils.

Vinogradov, A.P. 1959. *The geochemistry of rare and dispersed chemical elements in soils*. 2.ed., New York: Consult Bureau.209p.

VROM (Ministry of Housing, Physical Planning and Environment the Netherlands). 1994. *Soil Protection Act*. 16p.

Walkley, A., Black, J.A. 1934. An examination of the Degtjareff method for determining soil organic matter, and proposed modification of the chromic acid titration method. *Soil Science*, 37:29—38.

Warren, H.V.; Delavault, R.E. 1958. Pathfinding elements in geochemical prospecting. In : Congreso Geologico Internacional (20 : 1958 : Ciudad de Mexico). Simposio de Exploracion Geoquimica (1958 : Ciudad de Mexico). *Anais....* Ciudad de Mexico, v. 1, p. 255-260.

Wedepohl, K.H. 1969. *Handbook of geochemistry*. Springer Verlag, New York. 447p.

Weijden C.H., Weijden R.D. 1995. Mobility of major, minor and some redox-sensitive trace elements and rare-earth elements during weathering of four granitoids in central Portugal. *Chemical Geology*, 125: 149-167.

Wilford J.R., Bierwirth P.N., Craig M.A. 1997. Application of airborne gamma-ray spectrometry in soil/regolith mapping and applied geomorphology. *AGSO Journal of Australian Geology & Geophysics*, 17 (2): 201-216.

Zhang, X.P.; Deng, W.; Yang, X.M. 2002. The background concentrations of 13 soil trace elements and their relationships to parent materials and vegetation in Xizang (Tibet), China. *Journal of Asian Science*, v.21, p. 167-174.

ANEXO 1

Neste item estão discriminados através de tabelas (Tabelas 7.1 a 7.16), todos os valores das concentrações dos metais pesados analisados neste estudo (Al, Fe, Mn, Cd, Co, Ni e Pb) com a indicação dos respectivos parâmetros para avaliação da qualidade dos dados analíticos (limite de detecção, limite de quantificação, exatidão e precisão do método) e em cada estação climática considerada (seca e chuvosa).

Vale salientar que as amostras foram numeradas de 1 a 28 e que correspondem à:

- Amostra 01: horizonte Ap do perfil CAE-01;
- Amostra 02: horizonte RCr do perfil CAE-01;
- Amostra 03: rocha do perfil CAE-01;

- Amostra 04: horizonte Ap do perfil CAE-02;
- Amostra 05: horizonte Cr₃ do perfil CAE-02;
- Amostra 06: horizonte Cr₂ do perfil CAE-02;
- Amostra 07: rocha do perfil CAE-02;

- Amostra 08: horizonte Ap do perfil CAE-03;
- Amostra 09: horizonte Cr₃ do perfil CAE-03;
- Amostra 10: horizonte Cr₂ do perfil CAE-03;
- Amostra 11: rocha do perfil CAE-03;

- Amostra 12: horizonte Ap do perfil CAE-04;
- Amostra 13: horizonte A do perfil CAE-04;
- Amostra 14: horizonte Cr₂ do perfil CAE-04;
- Amostra 15: rocha do perfil CAE-04;

- Amostra 16: horizonte Ap do perfil CAE-05;
- Amostra 17: horizonte AC do perfil CAE-05;
- Amostra 18: horizonte CrR do perfil CAE-05;
- Amostra 19: rocha do perfil CAE-05;

- Amostra 20: horizonte Ap do perfil CAE-06;
- Amostra 21: horizonte C₁ do perfil CAE-06;
- Amostra 22: horizonte C₂ do perfil CAE-06;
- Amostra 23: rocha do perfil CAE-06;

- Amostra 24: horizonte Ap do perfil CAE-07;
- Amostra 25: horizonte AC do perfil CAE-07;
- Amostra 26: horizonte Cr₃ do perfil CAE-07;
- Amostra 27: horizonte Cr₂ do perfil CAE-07;
- Amostra 28: rocha do perfil CAE-07.

Tabela 7.1: Concentração de Al nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca.

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
50,46 mg.kg ⁻¹	110,36 mg.kg ⁻¹	- 0,17 %	2,04 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Al (mg.kg ⁻¹)	
01		870 ± 20	
02		1150 ± 24	
03		1700 ± 36	
04		1003 ± 22	
05		691 ± 37	
06		1735 ± 36	
07		2019 ± 43	
08		384 ± 11	
09		340 ± 11	
10		595 ± 15	
11		933 ± 21	
12		717 ± 17	
13		983 ± 24	
14		775 ± 18	
15		285 ± 11	
16		1101 ± 24	
17		850 ± 17	
18		707 ± 17	
19		1031 ± 23	
20		802 ± 18	
21		993 ± 22	
22		627 ± 18	
23		771 ± 18	
24		830 ± 19	
25		813 ± 19	
26		465 ± 12	
27		841 ± 20	
28		487 ± 13	
Material certificado (valor tabelado)		47.500 mg.kg ⁻¹ (44.000 – 51.000)	
Material certificado (valor encontrado)		47.420 ± 970 mg.kg ⁻¹ (46.450 – 48.390)	

Tabela 7.2: Concentração de Al nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
25,23 mg.kg ⁻¹	55,18 mg.kg ⁻¹	- 0,17 %	2,04 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Al (mg.kg ⁻¹)	
01		1077 ± 23	
02		791 ± 17	
03		2439 ± 50	
04		1012 ± 21	
05		2075 ± 43	
06		1768 ± 37	
07		1716 ± 36	
08		420 ± 10	
09		590 ± 14	
10		269 ± 7	
11		693 ± 15	
12		697 ± 16	
13		822 ± 17	
14		751 ± 16	
15		450 ± 10	
16		975 ± 20	
17		1123 ± 23	
18		665 ± 21	
19		766 ± 16	
20		611 ± 13	
21		692 ± 16	
22		806 ± 28	
23		1390 ± 30	
24		732 ± 10	
25		832 ± 23	
26		822 ± 6	
27		713 ± 26	
28		889 ± 37	
Material certificado (valor tabelado)		47.500 mg.kg ⁻¹ (44.000 – 51.000)	
Material certificado (valor encontrado)		47.420 ± 970 mg.kg ⁻¹ (46.450 – 48.390)	

Tabela 7.3: Concentração de Fe nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
23,61 mg.kg ⁻¹	54,55 mg.kg ⁻¹	0,73 %	1,29 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Fe (mg.kg ⁻¹)	
01		512 ± 8	
02		652 ± 7	
03		1234 ± 10	
04		1200 ± 15	
05		3346 ± 20	
06		3125 ± 12	
07		4704 ± 5	
08		9520 ± 30	
09		314 ± 14	
10		460 ± 5	
11		545 ± 40	
12		290 ± 6	
13		300 ± 27	
14		171,08 ± 0,05	
15		110 ± 7	
16		1105 ± 40	
17		1668 ± 2	
18		1500 ± 10	
19		1560 ± 30	
20		293 ± 1	
21		415 ± 10	
22		425 ± 30	
23		1909 ± 20	
24		1132 ± 10	
25		873 ± 30	
26		568 ± 1	
27		833 ± 34	
28		418 ± 50	
Material certificado (valor tabelado)		25.700mg.kg ⁻¹ (25.200-26.300)	
Material certificado (valor encontrado)		25.889 ± 335 mg.kg ⁻¹ (24.972 – 26.528)	

Tabela 7.4: Concentração de Fe nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
23,61 mg.kg ⁻¹	54,55 mg.kg ⁻¹	0,73 %	1,29 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Fe (mg.kg ⁻¹)
01	405 ± 25
02	375 ± 15
03	2650 ± 50
04	985 ± 20
05	3474 ± 64
06	2650 ± 40
07	2957 ± 30
08	575 ± 5
09	450 ± 13
10	267 ± 3
11	367 ± 8
12	193 ± 5
13	157 ± 5
14	112 ± 3
15	170 ± 8
16	932 ± 45
17	810 ± 30
18	513 ± 19
19	1247 ± 16
20	138 ± 3
21	147 ± 5
22	254 ± 7
23	2096 ± 24
24	849 ± 1
25	937 ± 20
26	1517 ± 10
27	1383 ± 50
28	1056 ± 100

Material certificado (valor tabelado)	25.700 mg.kg ⁻¹ (25.200-26.300)
Material certificado (valor encontrado)	25.889 ± 335 mg.kg ⁻¹ (24.972 – 26.528)

Tabela 7.5: Concentração de Mn nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,54 mg.kg ⁻¹	0,94 mg.kg ⁻¹	3,08 %	1,11 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Mn (mg.kg ⁻¹)
01	105,3 ± 0,1
02	183 ± 0,9
03	122 ± 1
04	147,8 ± 0,8
05	116,1 ± 0,6
06	134,7 ± 0,7
07	95 ± 1
08	4,6 ± 0,6
09	2,66 ± 0,06
10	1,47 ± 0,06
11	4,47 ± 0,06
12	137,87 ± 0,06
13	58,5 ± 0,3
14	25,3 ± 0,1
15	20,7 ± 0,1
16	247 ± 1
17	213,7 ± 0,7
18	95 ± 1
19	42,3 ± 0,5
20	137,3 ± 0,2
21	66,9 ± 0,3
22	41,5 ± 0,2
23	133,7 ± 0,7
24	109,1 ± 0,5
25	62,1 ± 0,3
26	31,3 ± 0,3
27	46,3 ± 0,2
28	39,5 ± 0,2

Material certificado (valor tabelado)	627mg.kg ⁻¹ (604 - 650)
Material certificado (valor encontrado)	646 ± 7 mg.kg ⁻¹ (639 - 653)

Tabela 7.6: Concentração de Mn nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,54 mg.kg ⁻¹	0,94 mg.kg ⁻¹	3,08 %	1,11 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Mn (mg.kg ⁻¹)	
01		79,9 ± 0,06	
02		164 ± 1	
03		109 ± 2	
04		136 ± 1	
05		120 ± 1	
06		124 ± 1	
07		59 ± 1	
08		2,9 ± 0,6	
09		3,83 ± 0,07	
10		2,43 ± 0,7	
11		10 ± 1	
12		59,5 ± 0,6	
13		59,5 ± 0,6	
14		70,5 ± 0,7	
15		40,7 ± 0,4	
16		63,7 ± 0,7	
17		86,9 ± 0,3	
18		208 ± 2	
19		61 ± 1	
20		87,7 ± 0,7	
21		92,5 ± 0,9	
22		77 ± 1	
23		66,0 ± 0,6	
24		225 ± 2	
25		65 ± 2	
26		60 ± 5	
27		123 ± 1	
28		83 ± 7	
Material certificado (valor tabelado)		627 mg.kg ⁻¹ (604 - 650)	
Material certificado (valor encontrado)		646 ± 7 mg.kg ⁻¹ (639 - 653)	

Tabela 7.7: Concentração de Cd nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0105 mg.kg ⁻¹	0,0139 mg.kg ⁻¹	5,11 %	6,16 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Cd (mg.kg ⁻¹)
01	0,078 ± 0,005
02	0,106 ± 0,007
03	0,036 ± 0,002
04	< 0,0139
05	< 0,0139
06	0,017 ± 0,001
07	< 0,0139
08	< 0,0139
09	< 0,0139
10	< 0,0139
11	< 0,0139
12	0,016 ± 0,001
13	0,041 ± 0,003
14	0,077 ± 0,005
15	0,040 ± 0,002
16	0,120 ± 0,007
17	0,084 ± 0,005
18	0,048 ± 0,003
19	0,053 ± 0,003
20	0,048 ± 0,003
21	0,043 ± 0,003
22	0,015 ± 0,001
23	0,022 ± 0,001
24	0,014 ± 0,001
25	0,016 ± 0,001
26	< 0,0139
27	< 0,0139
28	< 0,0139

Material certificado (valor tabelado)	1,9 mg.kg ⁻¹ (1,1-2,7)
Material certificado (valor encontrado)	1,8 ± 0,1 mg.kg ⁻¹ (1,7-1,9)

Tabela 7.8: Concentração de Cd nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0105 mg.kg ⁻¹	0,0139 mg.kg ⁻¹	5,11 %	6,16 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Cd (mg.kg ⁻¹)
01	0,026 ± 0,001
02	0,021 ± 0,001
03	0,017 ± 0,001
04	< 0,0139
05	< 0,0105
06	< 0,0105
07	< 0,0105
08	< 0,0105
09	< 0,0105
10	< 0,0105
11	< 0,0105
12	< 0,0105
13	0,015 ± 0,001
14	< 0,0105
15	< 0,0105
16	0,037 ± 0,002
17	0,043 ± 0,002
18	< 0,0105
19	< 0,0105
20	< 0,0139
21	< 0,0139
22	< 0,0105
23	0,020 ± 0,001
24	0,020 ± 0,001
25	0,021 ± 0,001
26	< 0,0105
27	< 0,0105
28	< 0,0105

Material certificado (valor tabelado)	1,9 mg.kg ⁻¹ (1,1-2,7)
Material certificado (valor encontrado)	1,8 ± 0,1 mg.kg ⁻¹ (1,7-1,9)

Tabela 7.9: Concentração de Co nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0780 mg.kg ⁻¹	0,2620 mg.kg ⁻¹	22,05 %	4,41 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Co (mg.kg ⁻¹)	
01		3,2 ± 0,1	
02		7,0 ± 0,5	
03		6,2 ± 0,3	
04		2,0 ± 0,1	
05		2,10 ± 0,05	
06		1,8 ± 0,1	
07		1,9 ± 0,3	
08		0,70 ± 0,08	
09		0,61 ± 0,07	
10		0,31 ± 0,05	
11		0,27 ± 0,07	
12		1,06 ± 0,08	
13		1,27 ± 0,09	
14		0,43 ± 0,06	
15		0,42 ± 0,08	
16		7,6 ± 0,2	
17		4,3 ± 0,2	
18		2,3 ± 0,1	
19		1,4 ± 0,09	
20		1,0 ± 0,2	
21		1,6 ± 0,1	
22		0,9 ± 0,9	
23		1,2 ± 0,2	
24		2,5 ± 0,1	
25		2,85 ± 0,07	
26		1,6 ± 0,1	
27		2,35 ± 0,1	
28		2,50 ± 0,01	
Material certificado (valor tabelado)		9,25 mg.kg ⁻¹ (8,4-10,1)	
Material certificado (valor encontrado)		11,3 ± 0,5 mg.kg ⁻¹ (10,8-11,8)	

Tabela 7.10: Concentração de Co nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0693 mg.kg ⁻¹	0,2311 mg.kg ⁻¹	12,43 %	1,92 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Co (mg.kg ⁻¹)	
01		2,5 ± 0,2	
02		4,26 ± 0,09	
03		5,4 ± 0,1	
04		1,55 ± 0,04	
05		1,80 ± 0,4	
06		1,71 ± 0,04	
07		1,35 ± 0,03	
08		0,64 ± 0,03	
09		0,58 ± 0,03	
10		0,27 ± 0,02	
11		0,40 ± 0,05	
12		1,81 ± 0,04	
13		1,26 ± 0,07	
14		1,30 ± 0,06	
15		0,98 ± 0,06	
16		7,8 ± 0,2	
17		5,7 ± 0,1	
18		1,97 ± 0,04	
19		1,90 ± 0,03	
20		0,91 ± 0,03	
21		0,80 ± 0,03	
22		1,18 ± 0,02	
23		1,58 ± 0,04	
24		2,34 ± 0,03	
25		3,0 ± 0,2	
26		7,5 ± 0,1	
27		4,46 ± 0,09	
28		7,24 ± 0,01	
Material certificado (valor tabelado)		9,25 mg.kg ⁻¹ (8,4-10,1)	
Material certificado (valor encontrado)		10,4 ± 0,2 mg.kg ⁻¹ (10,2-10,6)	

Tabela 7.11: Concentração de Ni nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0315 mg.kg ⁻¹	0,1051 mg.kg ⁻¹	27,59 %	2,7 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Ni (mg.kg ⁻¹)	
01		4,0 ± 0,1	
02		3,7 ± 0,1	
03		3,00 ± 0,08	
04		6,3 ± 0,2	
05		3,17 ± 0,09	
06		2,38 ± 0,07	
07		1,11 ± 0,04	
08		2,49 ± 0,07	
09		0,34 ± 0,08	
10		0,50 ± 0,02	
11		0,47 ± 0,03	
12		0,88 ± 0,04	
13		0,8 ± 0,3	
14		0,81 ± 0,03	
15		0,40 ± 0,07	
16		13,6 ± 0,4	
17		11,6 ± 0,3	
18		3,6 ± 0,1	
19		3,2 ± 0,1	
20		2,40 ± 0,08	
21		2,43 ± 0,02	
22		0,84 ± 0,03	
23		1,24 ± 0,04	
24		2,10 ± 0,06	
25		3,18 ± 0,09	
26		2,15 ± 0,3	
27		3,2 ± 0,1	
28		1,8 ± 0,4	
Material certificado (valor tabelado)		29 mg.kg ⁻¹ (21-37)	
Material certificado (valor encontrado)		37 ± 1 mg.kg ⁻¹ (36-38)	

Tabela 7.12: Concentração de Ni nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0587 mg.kg ⁻¹	0,1956 mg.kg ⁻¹	37,93 %	5 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Ni (mg.kg ⁻¹)	
01		1,11 ± 0,06	
02		3,3 ± 0,2	
03		2,2 ± 0,1	
04		0,64 ± 0,03	
05		1,10 ± 0,07	
06		1,68 ± 0,06	
07		7,7 ± 0,4	
08		2,0 ± 0,1	
09		1,4 ± 0,3	
10		0,90 ± 0,05	
11		1,56 ± 0,08	
12		0,68 ± 0,05	
13		0,52 ± 0,04	
14		0,81 ± 0,04	
15		6,6 ± 0,3	
16		6,85 ± 0,3	
17		10,5 ± 0,3	
18		2,25 ± 0,07	
19		2,1 ± 0,1	
20		0,54 ± 0,03	
21		0,65 ± 0,04	
22		0,80 ± 0,08	
23		2,2 ± 0,1	
24		2,1 ± 0,1	
25		2,7 ± 0,1	
26		3,1 ± 0,1	
27		1,9 ± 0,4	
28		3,2 ± 0,1	
Material certificado (valor tabelado)		29 mg.kg ⁻¹ (21-37)	
Material certificado (valor encontrado)		40 ± 2 mg.kg ⁻¹ (38-42)	

Tabela 7.13: Concentração de Cu nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,2151 mg.kg ⁻¹	0,3297 mg.kg ⁻¹	-10,18 %	7,24 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Cu (mg.kg ⁻¹)
01	1,7 ± 0,1
02	1,14 ± 0,08
03	4,9 ± 0,4
04	4,5 ± 0,3
05	3,0 ± 0,2
06	1,8 ± 0,1
07	5,3 ± 0,4
08	0,70 ± 0,05
09	< LQ
10	< LQ
11	< LD
12	1,4 ± 0,1
13	0,85 ± 0,2
14	< LD
15	< LD
16	20 ± 1
17	17 ± 1
18	13 ± 1
19	10,6 ± 0,9
20	13,1 ± 0,9
21	15,2 ± 0,8
22	11,9 ± 0,9
23	7,6 ± 0,5
24	10,5 ± 0,8
25	8,9 ± 0,8
26	10,0 ± 0,7
27	8,2 ± 0,6
28	7,45 ± 0,6

Material certificado (valor tabelado)	11 mg.kg ⁻¹ (9-13)
Material certificado (valor encontrado)	9,9 ± 0,7 mg.kg ⁻¹ (9,2-10,6)

Tabela 7.14: Concentração de Cu nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,2558 mg.kg ⁻¹	0,4910 mg.kg ⁻¹	- 8,11 %	6,4 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Cu (mg.kg ⁻¹)
01	1,6 ± 0,1
02	1,9 ± 0,1
03	3,2 ± 0,2
04	4,2 ± 0,3
05	1,17 ± 0,08
06	4,4 ± 0,1
07	3,5 ± 0,2
08	0,95 ± 0,07
09	0,60 ± 0,06
10	0,67 ± 0,05
11	3,3 ± 0,2
12	2,5 ± 0,2
13	0,70 ± 0,06
14	< LD
15	< LQ
16	9,0 ± 0,6
17	12,2 ± 0,8
18	2,2 ± 0,1
19	2,4 ± 0,2
20	1,9 ± 0,1
21	1,5 ± 0,1
22	0,62 ± 0,05
23	0,58 ± 0,06
24	2,8 ± 0,3
25	2,2 ± 0,1
26	2,0 ± 0,1
27	2,1 ± 0,1
28	1,8 ± 0,1

Material certificado (valor tabelado)	11 mg.kg ⁻¹ (9-13)
Material certificado (valor encontrado)	9,9 ± 0,7 mg.kg ⁻¹ (9,2-10,6)

Tabela 7.15: Concentração de Pb nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação seca

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,04 mg.kg ⁻¹	0,13 mg.kg ⁻¹	6,86 %	6,73 %
* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).			
Amostra		Pb (mg.kg ⁻¹)	
01		9,1 ± 0,2	
02		7,5 ± 0,3	
03		5,95 ± 0,2	
04		14,1 ± 0,6	
05		7,7 ± 0,3	
06		9,95 ± 0,07	
07		8,5 ± 0,4	
08		2,8 ± 0,1	
09		2,6 ± 0,1	
10		3,25 ± 0,2	
11		2,05 ± 0,07	
12		13,30 ± 0,01	
13		15 ± 1	
14		12,05 ± 0,8	
15		6,7 ± 0,5	
16		12,1 ± 0,7	
17		7,05 ± 0,6	
18		4,4 ± 0,6	
19		3,4 ± 0,3	
20		6,5 ± 0,4	
21		6,15 ± 0,3	
22		4,3 ± 0,3	
23		2,95 ± 0,07	
24		5,15 ± 0,4	
25		5,1 ± 0,3	
26		2,8 ± 0,1	
27		3,2 ± 0,1	
28		1,85 ± 0,07	
Material certificado (valor tabelado)		60 mg.kg ⁻¹ (55 - 71)	
Material certificado (valor encontrado)		64 ± 4 mg.kg ⁻¹ (60 - 68)	

Tabela 7.16: Concentração de Pb nas amostras dos perfis solo-rocha da área de mineralização de U de São José de Espinharas, na estação chuvosa

Limite de detecção do método	Limite de quantificação do método	Exatidão do método (Erro relativo)*	Precisão do método (coeficiente de variação)*
0,0546 mg.kg ⁻¹	0,1819 mg.kg ⁻¹	- 3,17 %	13,11 %

* Calculados em relação ao material certificado IAEA-SOIL-7 (Trace Elements in Soil).

Amostra	Pb (mg.kg ⁻¹)
01	7,9 ± 0,1
02	3,9 ± 0,5
03	8,5 ± 0,7
04	10,5 ± 1
05	6,7 ± 0,8
06	8,5 ± 0,7
07	3,8 ± 0,3
08	5,8 ± 0,5
09	2,35 ± 0,07
10	5,0 ± 0,6
11	11,5 ± 0,8
12	11,05 ± 0,05
13	13,5 ± 2
14	14,8 ± 0,3
15	8,5 ± 0,9
16	8 ± 1
17	4,2 ± 0,6
18	2,45 ± 0,07
19	4,6 ± 0,2
20	4,4 ± 0,5
21	5,25 ± 0,8
22	5,3 ± 0,1
23	4,5 ± 0,6
24	7,3 ± 0,7
25	7,3 ± 0,7
26	4,5 ± 0,8
27	4,9 ± 0,6
28	8,5 ± 0,7

Material certificado (valor tabelado)	63 mg.kg ⁻¹ (55 - 71)
Material certificado (valor encontrado)	61 ± 8 mg.kg ⁻¹ (53 - 69)

ANEXO 2

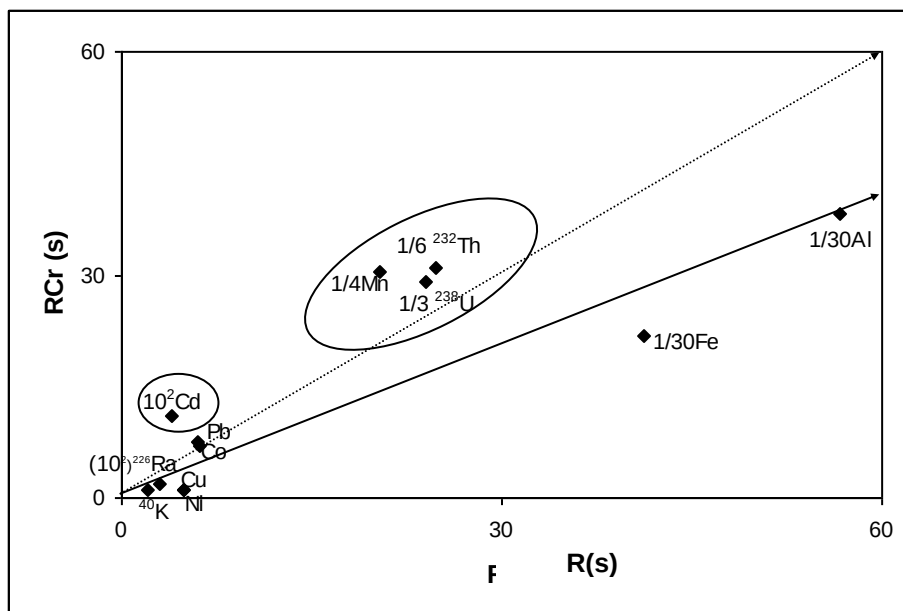


Figura 4.29: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-01, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $RCr_{(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$).

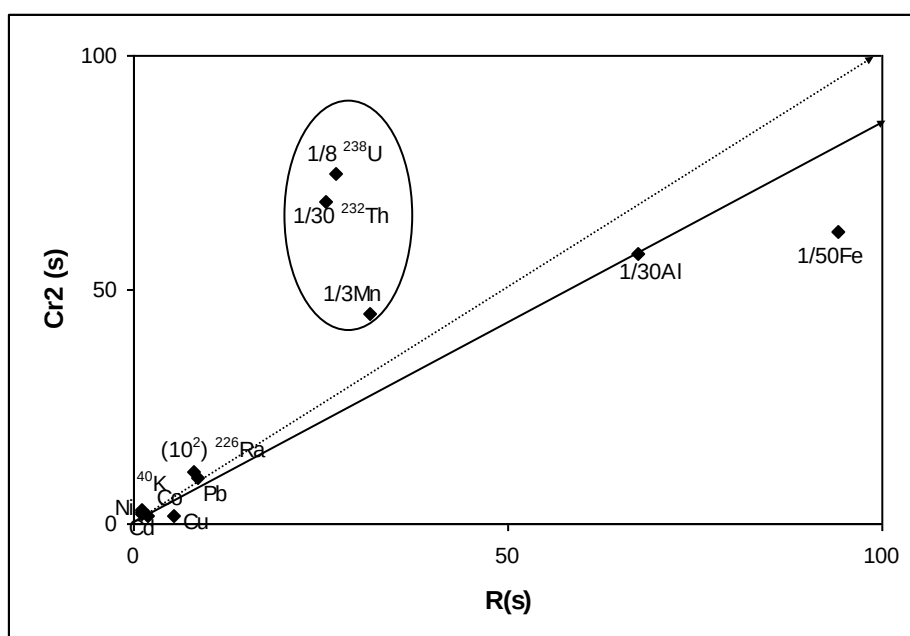


Figura 4.30: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{2(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$).

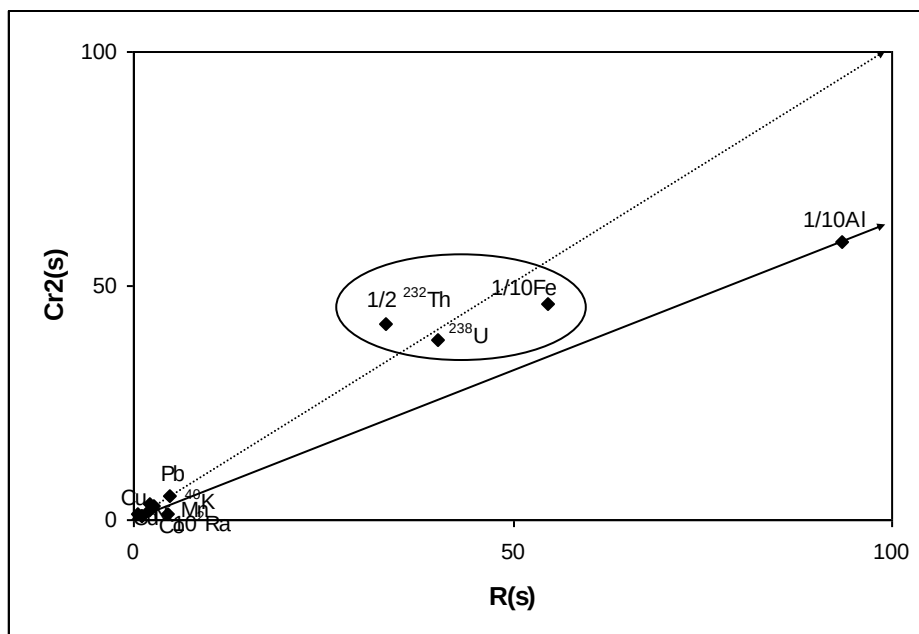


Figura 4.31: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{2(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$).

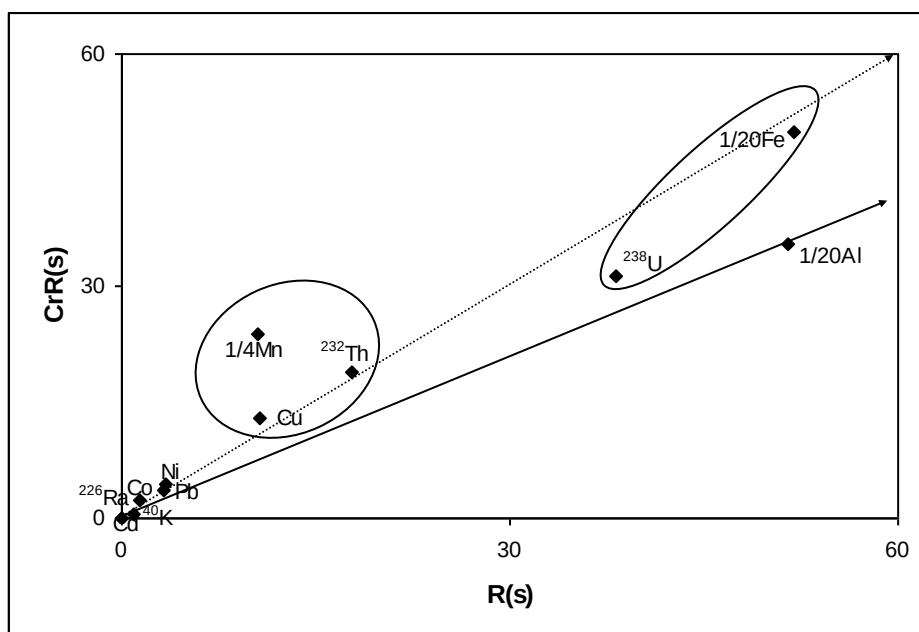


Figura 4.32: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $CrR_{(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$).

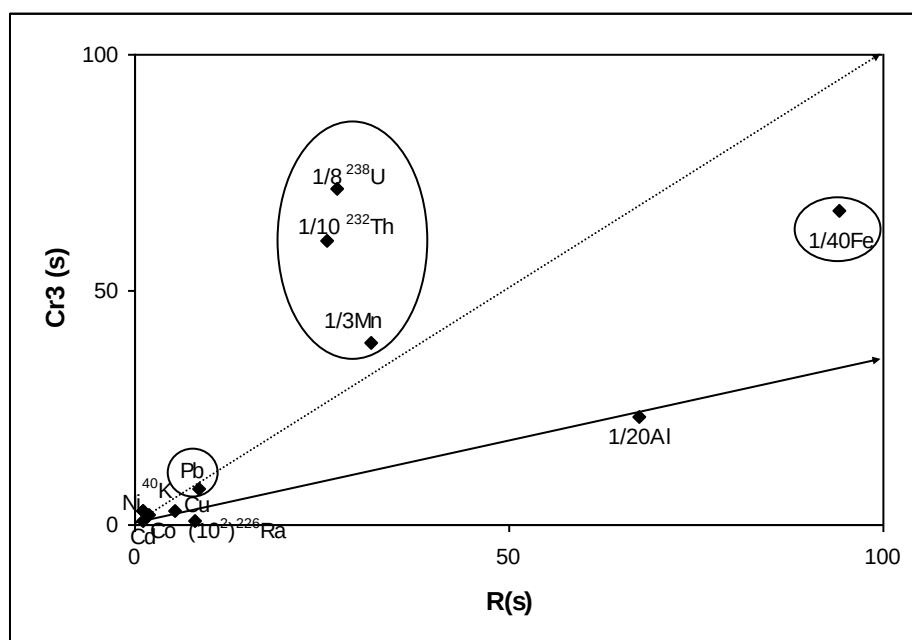


Figura 4.33: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(s)}$ em relação à rocha original ($R(s)$).

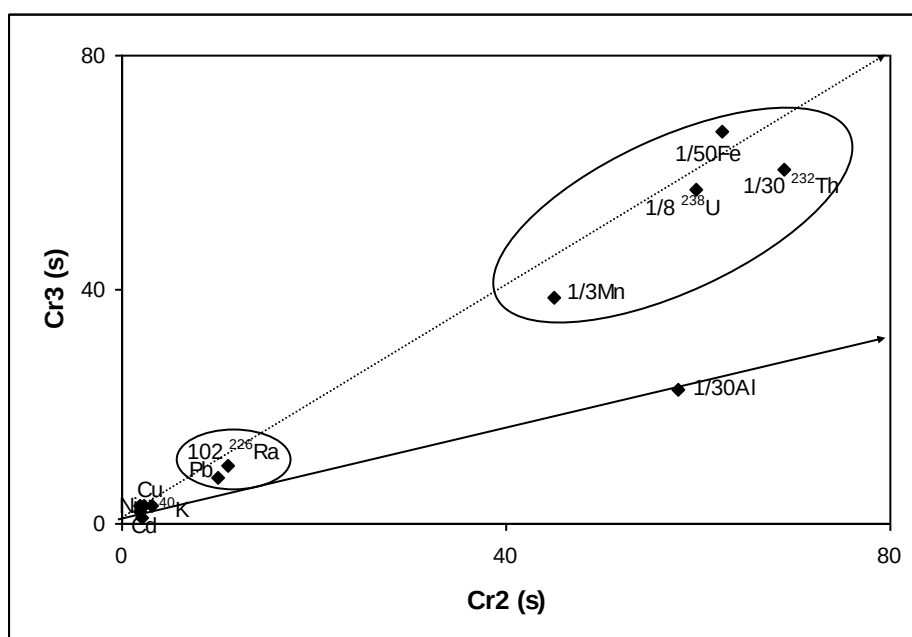


Figura 4.34: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(s)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{2(s)}$).

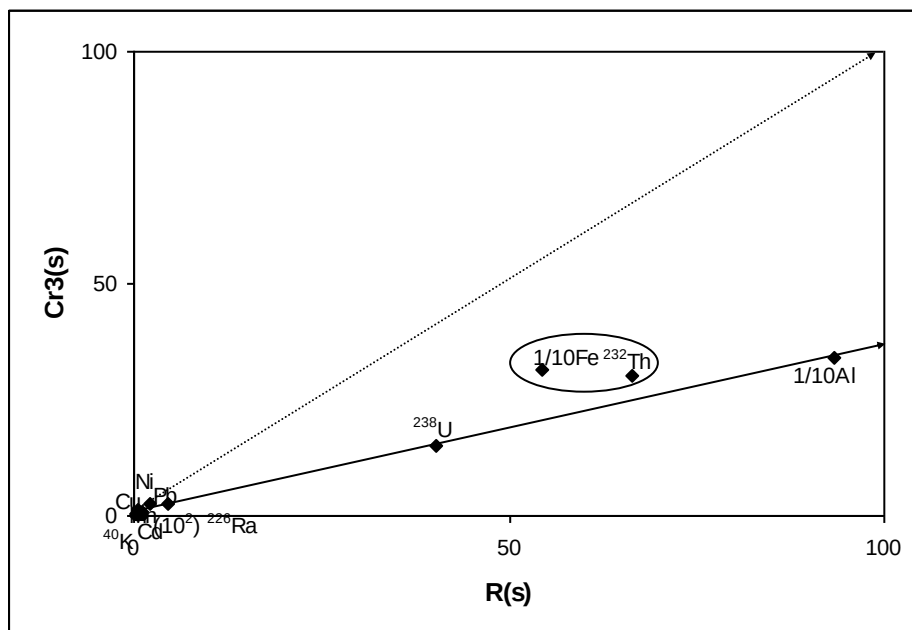


Figura 4.35: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(s)}$ em relação à rocha original ($R(s)$)

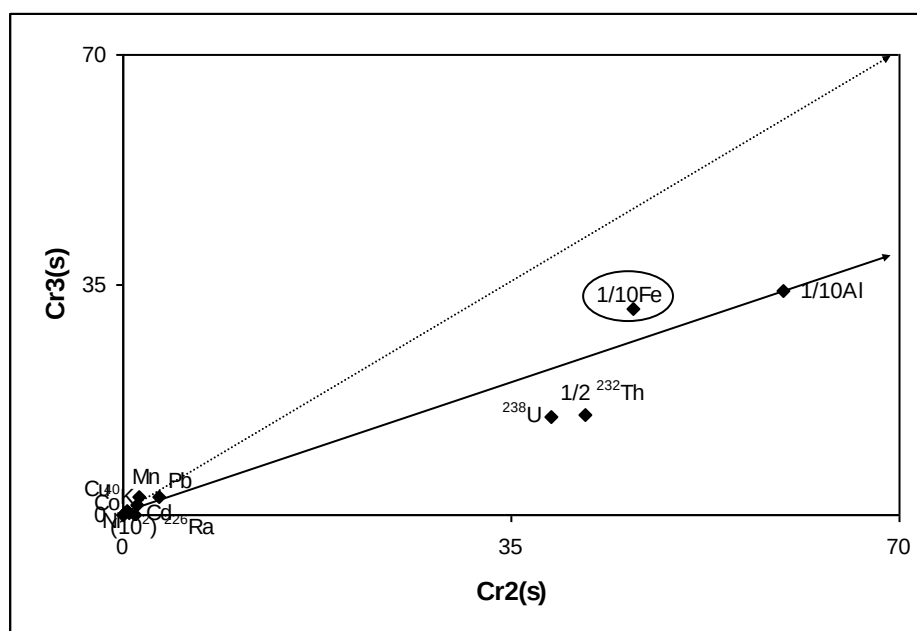


Figura 4.36: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(s)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{2(s)}$).

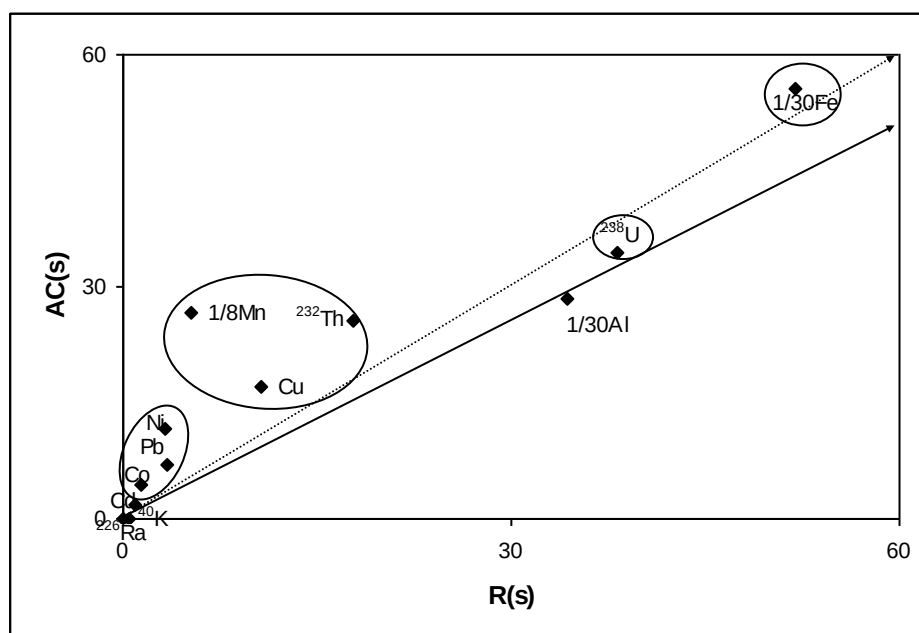


Figura 4.37: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $AC_{(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$)

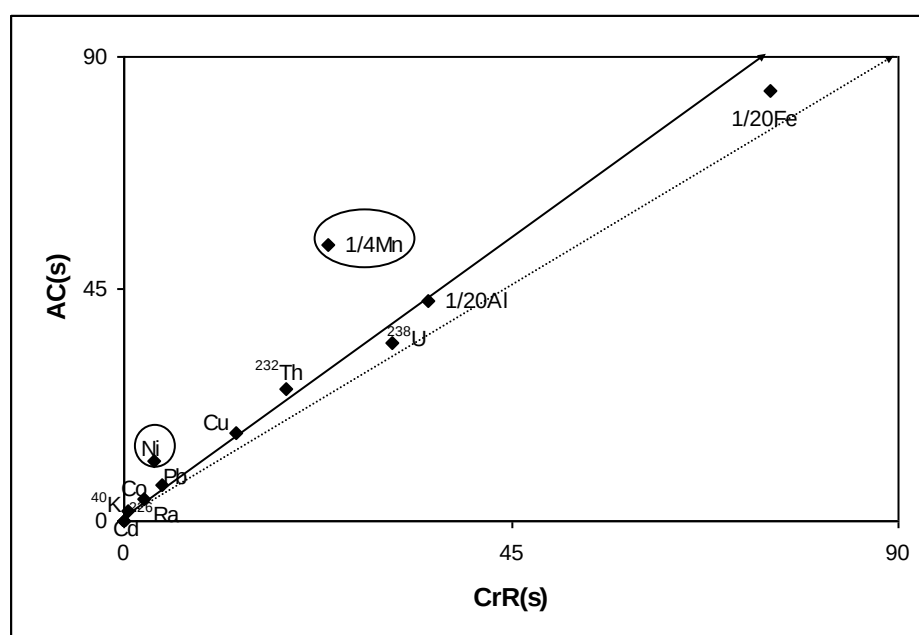


Figura 4.38: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $AC_{(s)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($CrR_{(s)}$).

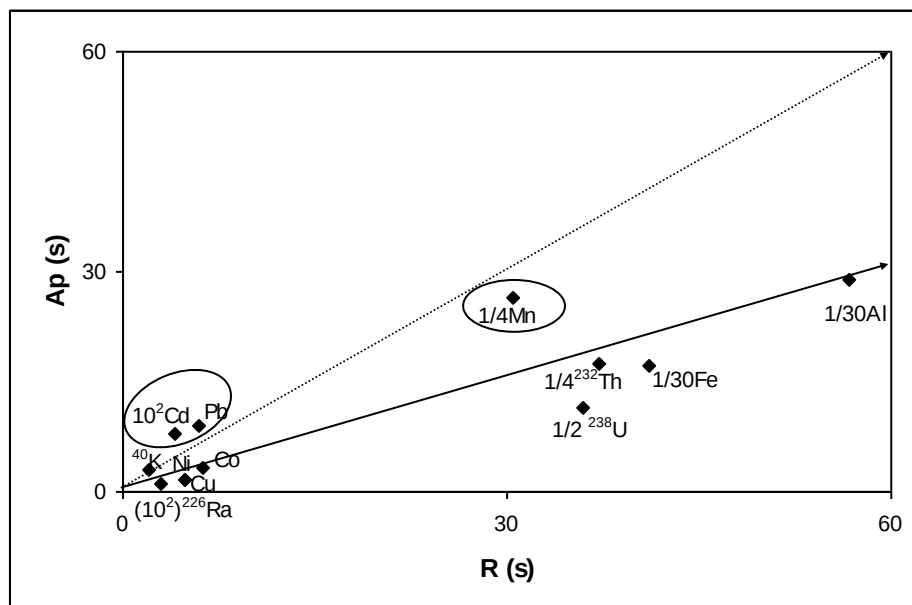


Figura 4.39: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-01, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $A_p(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$)

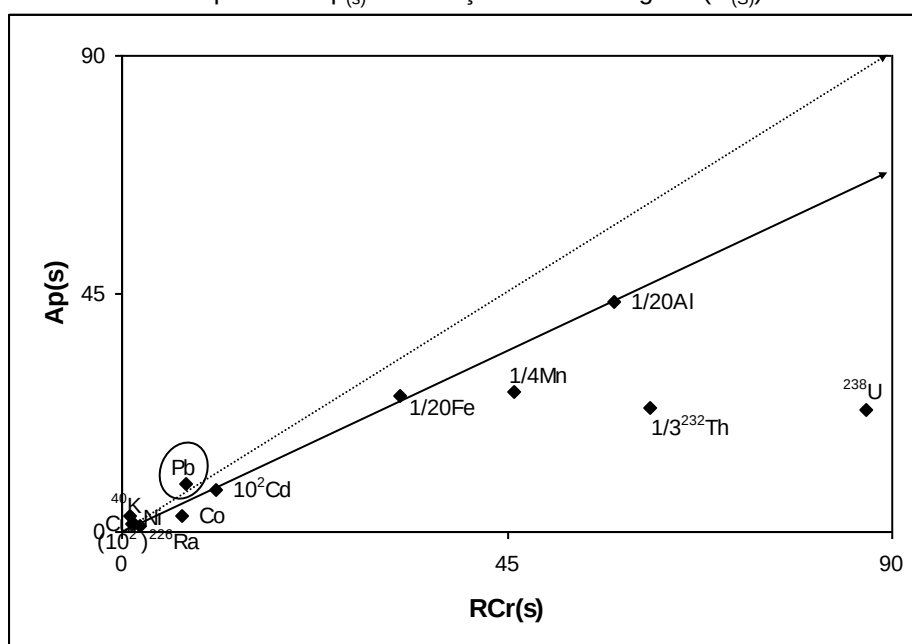


Figura 4.40: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-01, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $A_p(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($\text{RCr}(s)$).

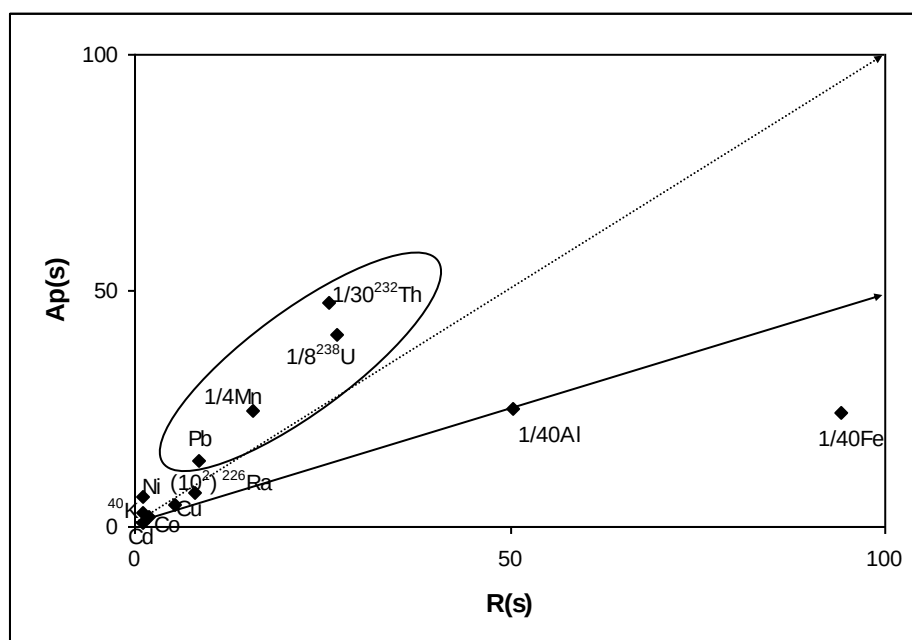


Figura 4.41: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$)

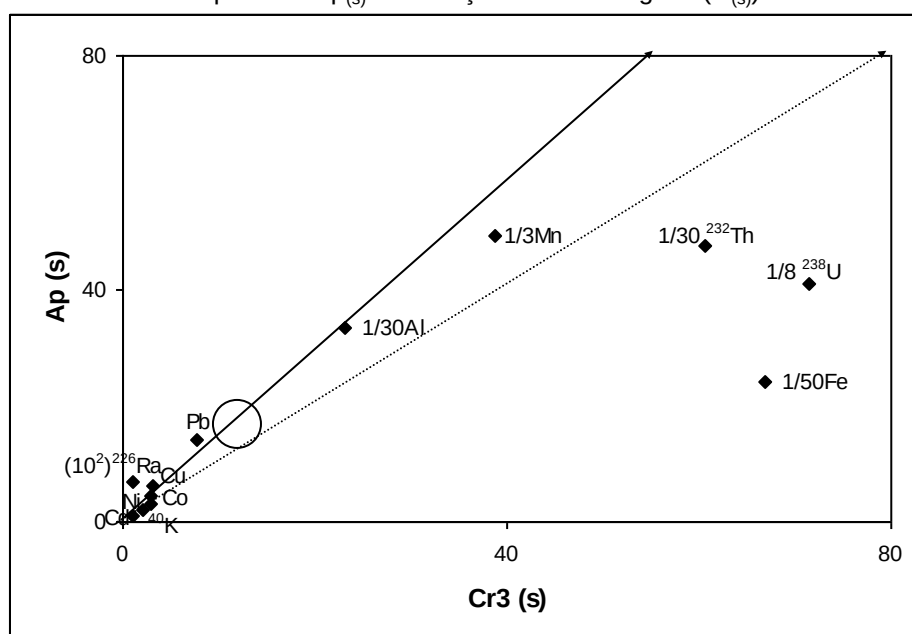


Figura 4.42: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr3(s)$).

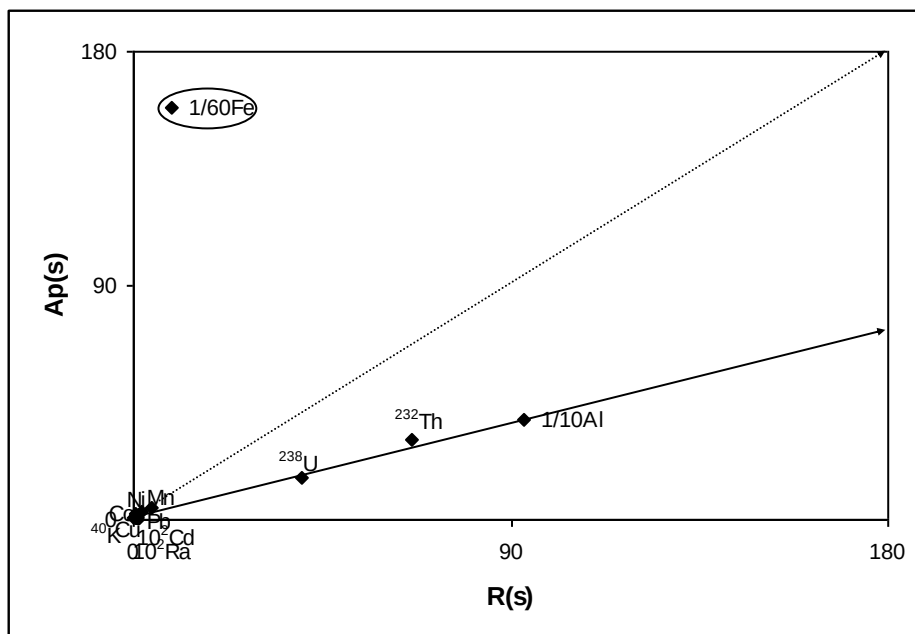


Figura 4.43: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$)

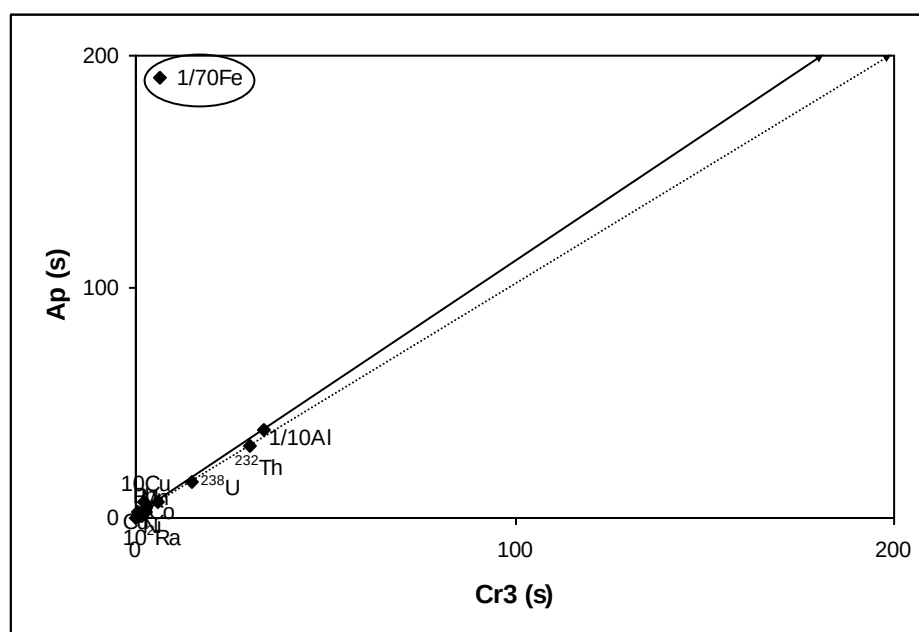


Figura 4.44: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr3(s)$).

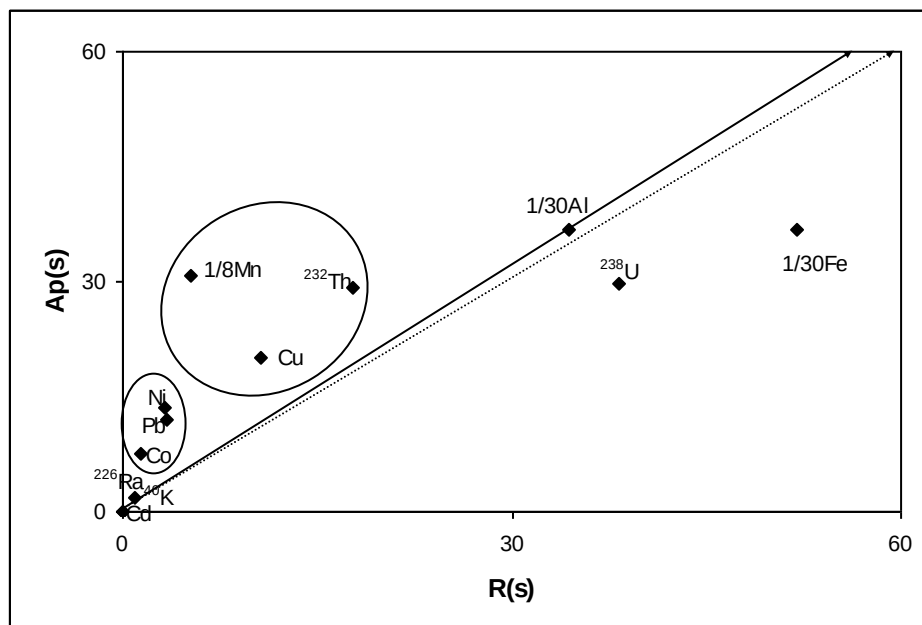


Figura 4.45: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$)

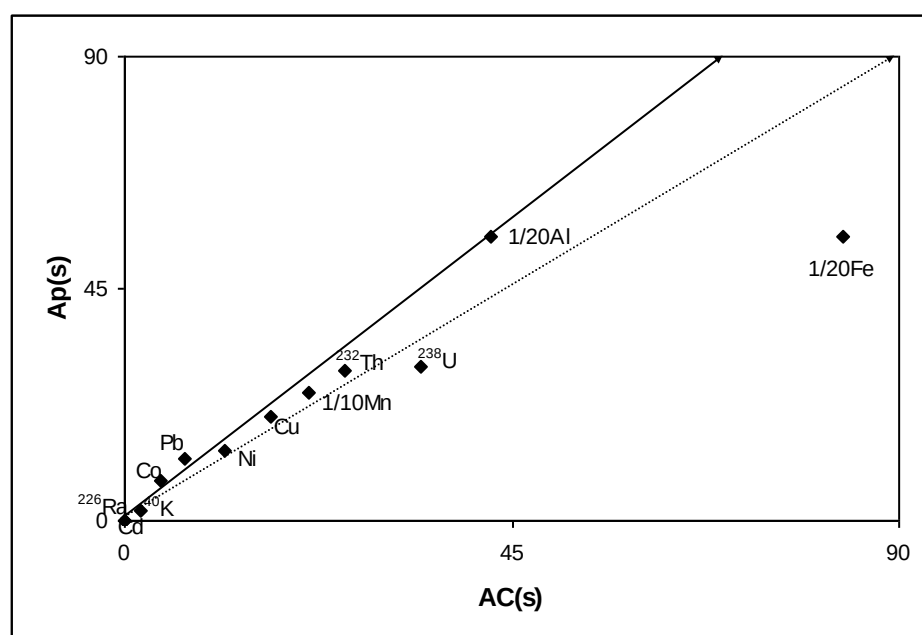


Figura 4.46: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($AC(s)$).

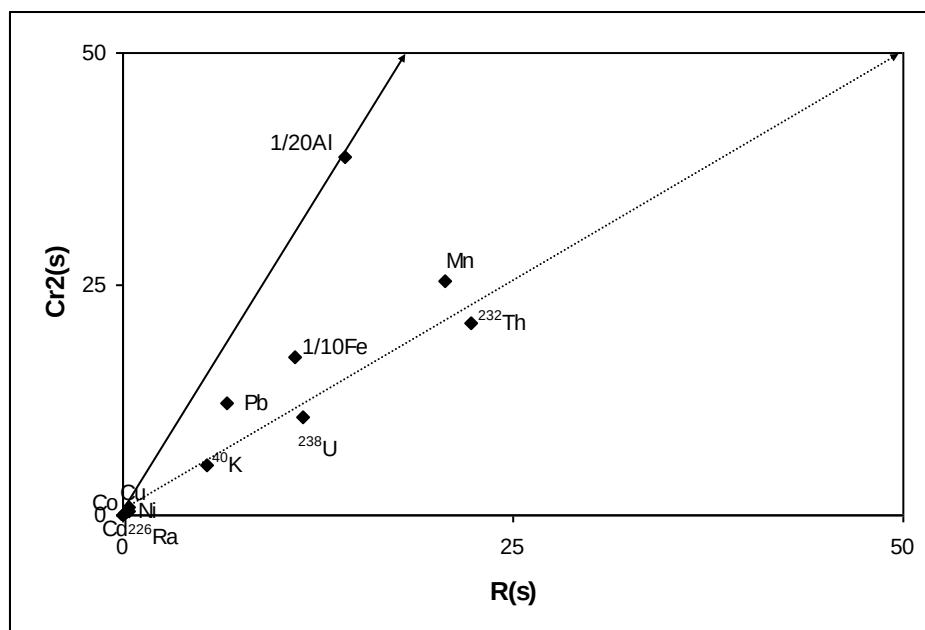


Figura 4.47: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-04, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_2(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$).

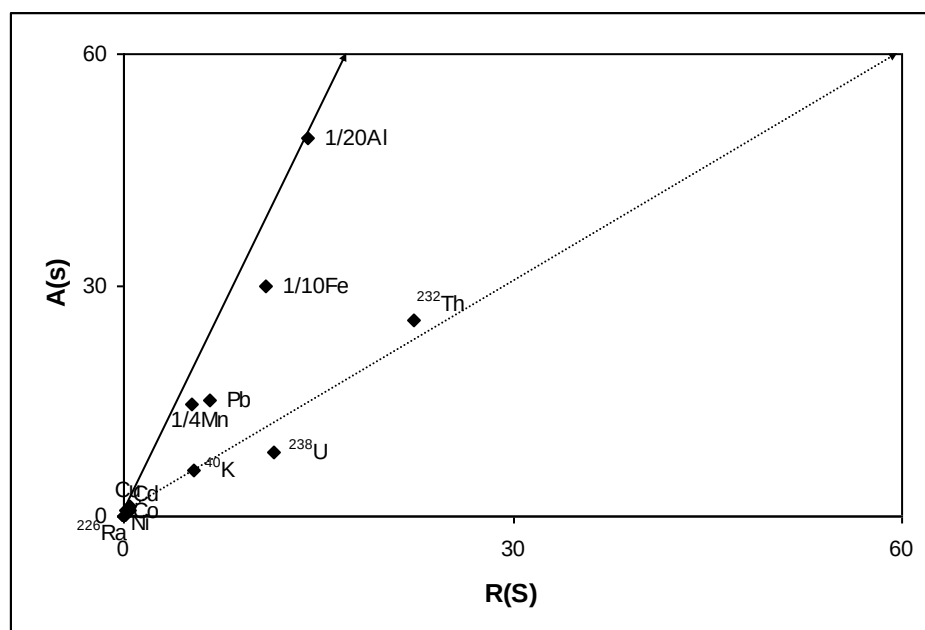


Figura 4.48: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-04, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $A(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$).

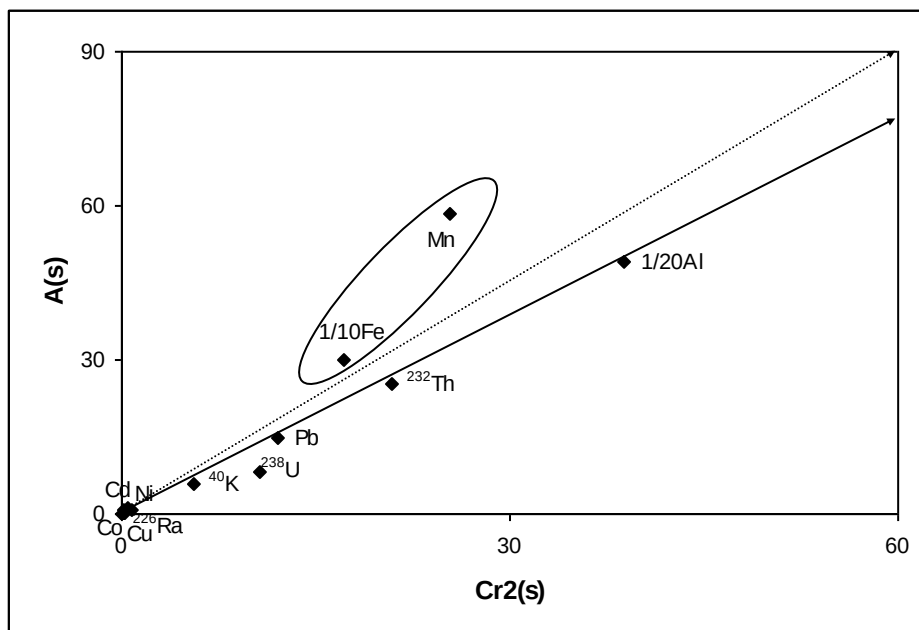


Figura 4.49: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-04, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $A(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr_{2(s)}$).

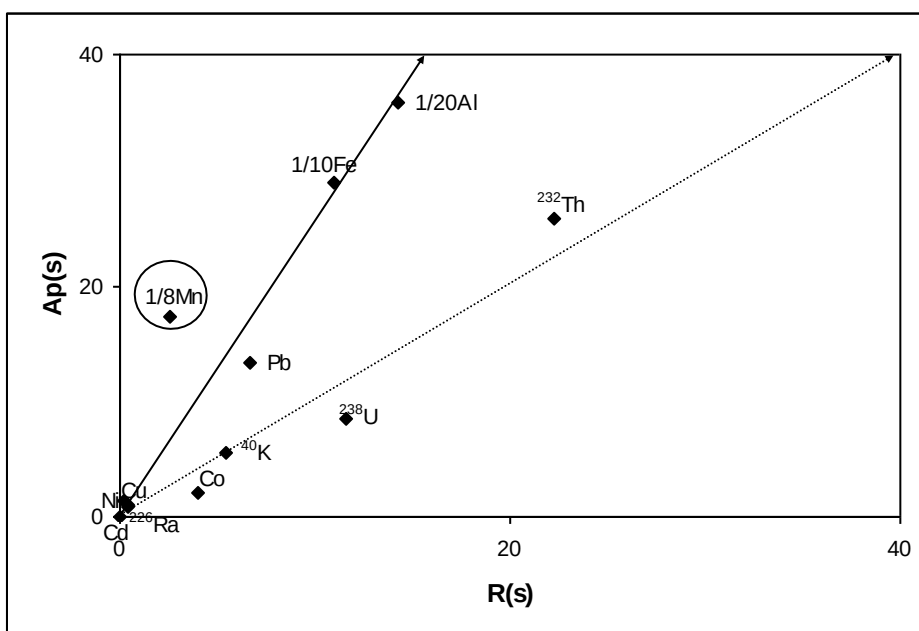


Figura 4.50: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-04, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$).

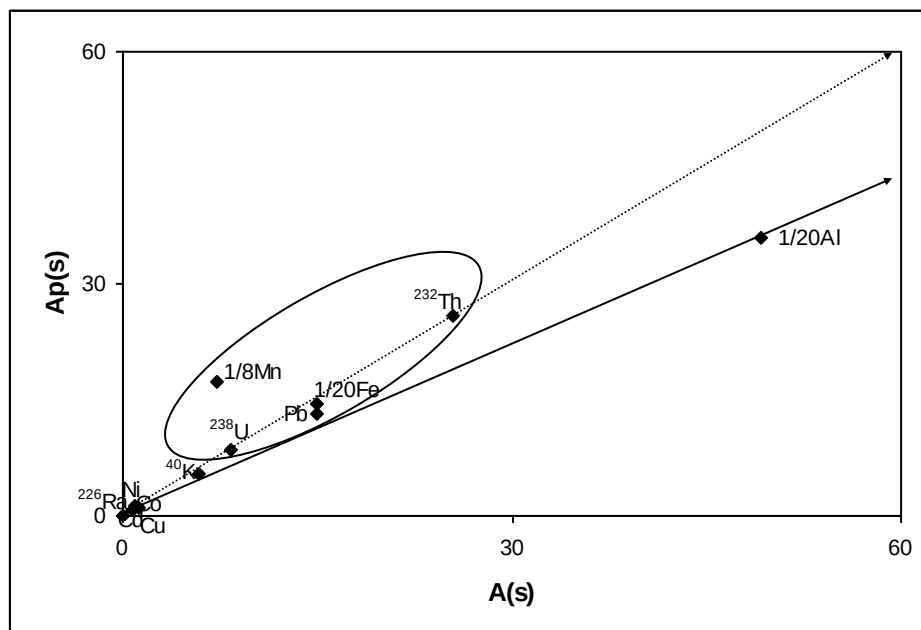


Figura 4.51: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-04, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $A_{p(s)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($A_{(s)}$).

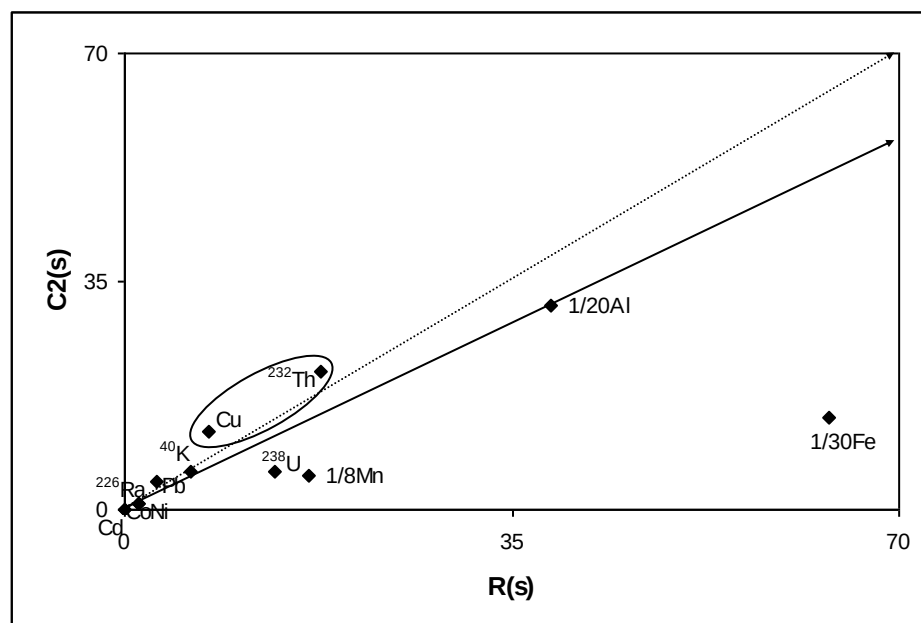


Figura 4.52: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $C_{2(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$).

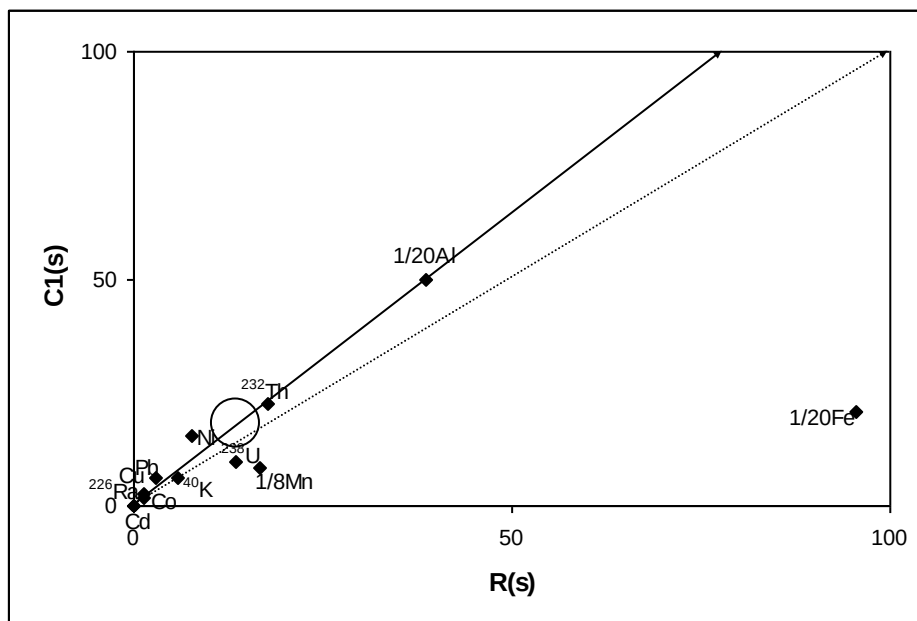


Figura 4.53: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $C1(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$)

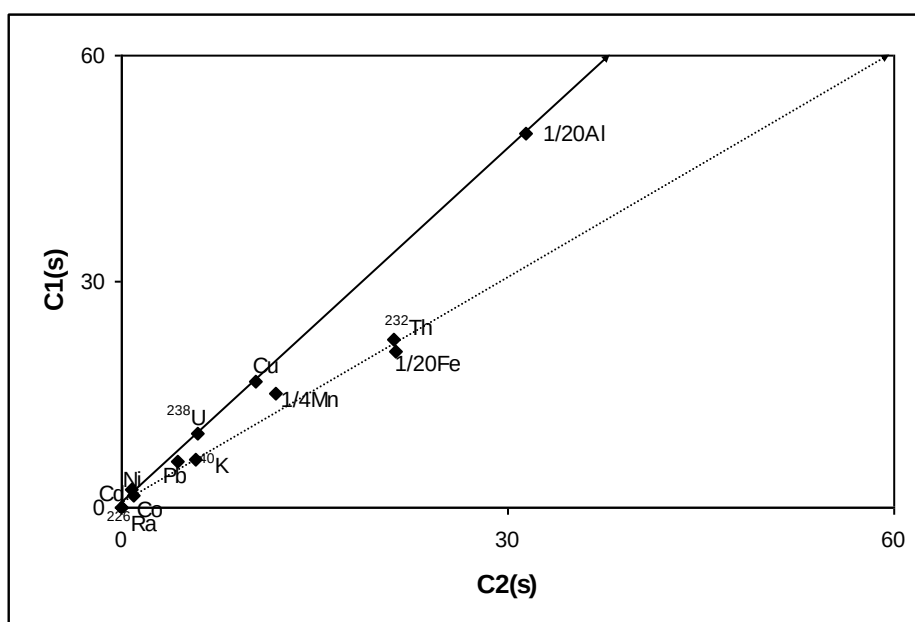


Figura 4.54: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $C1(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($C2(s)$)

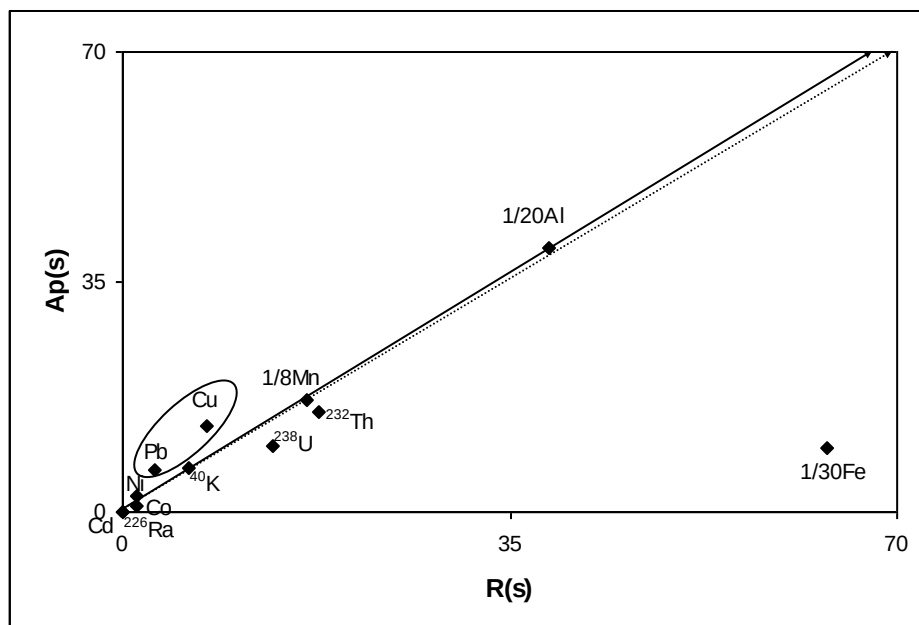


Figura 4.55: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $A_{p(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$).

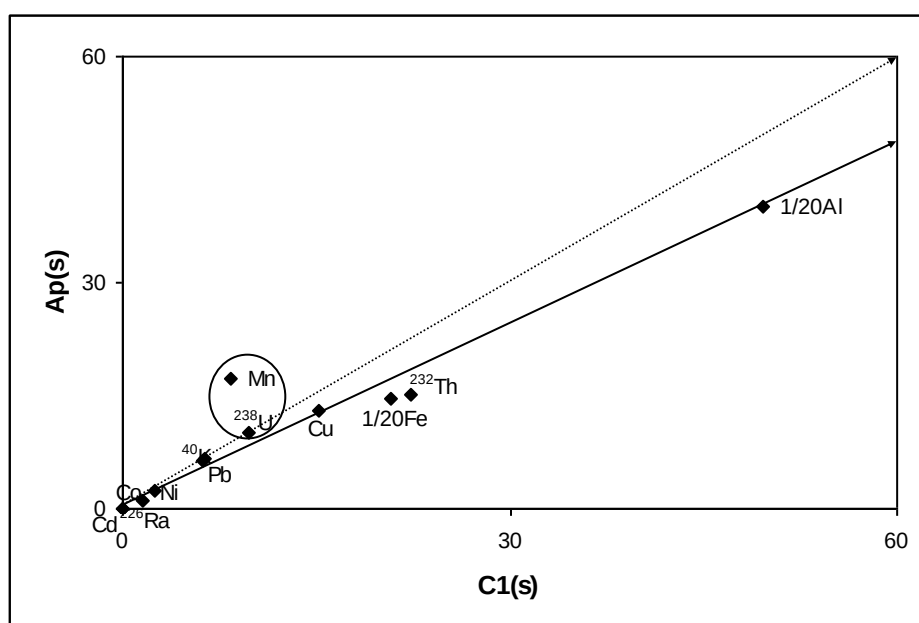


Figura 4.56: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $A_{p(s)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($C1_{(s)}$).

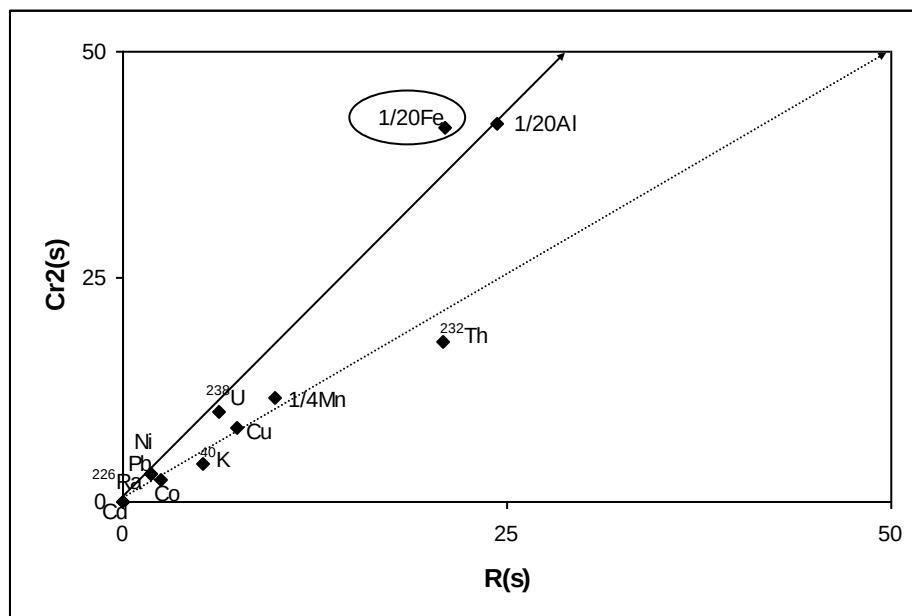


Figura 4.57: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{2(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$)

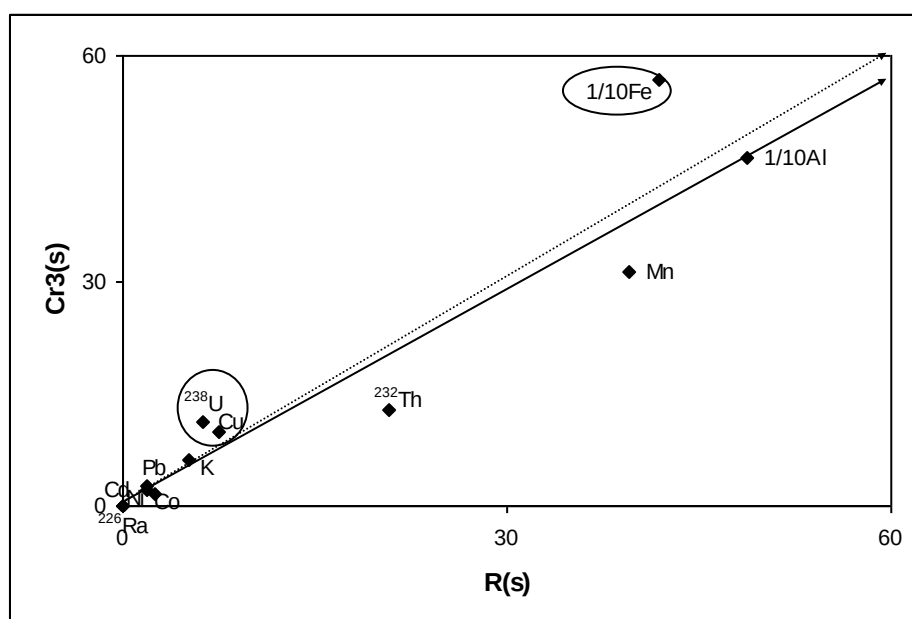


Figura 4.58: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(s)}$ em relação à rocha original ($R_{(s)}$)

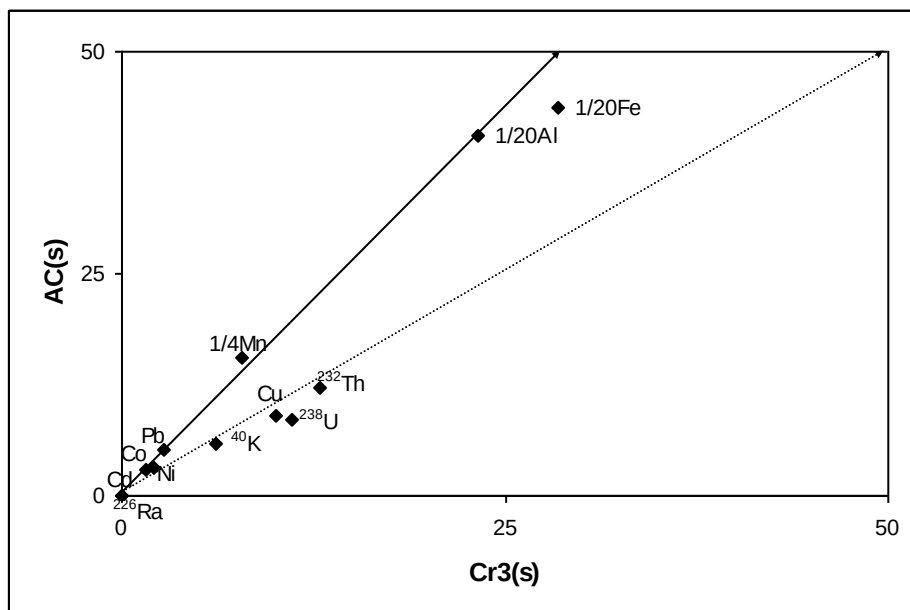


Figura 4.61: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $AC(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($Cr3(s)$)

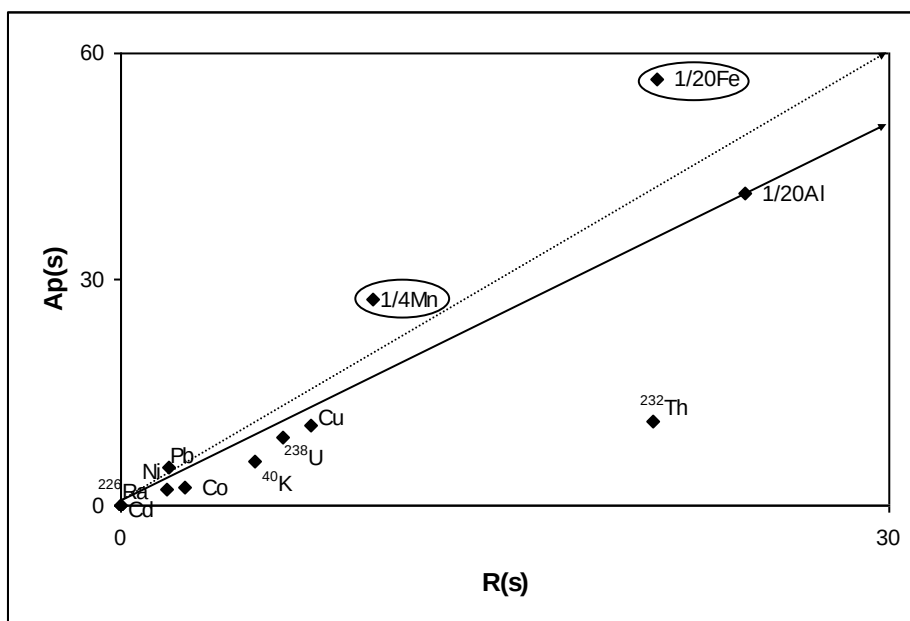


Figura 4.62: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação à rocha original ($R(s)$)

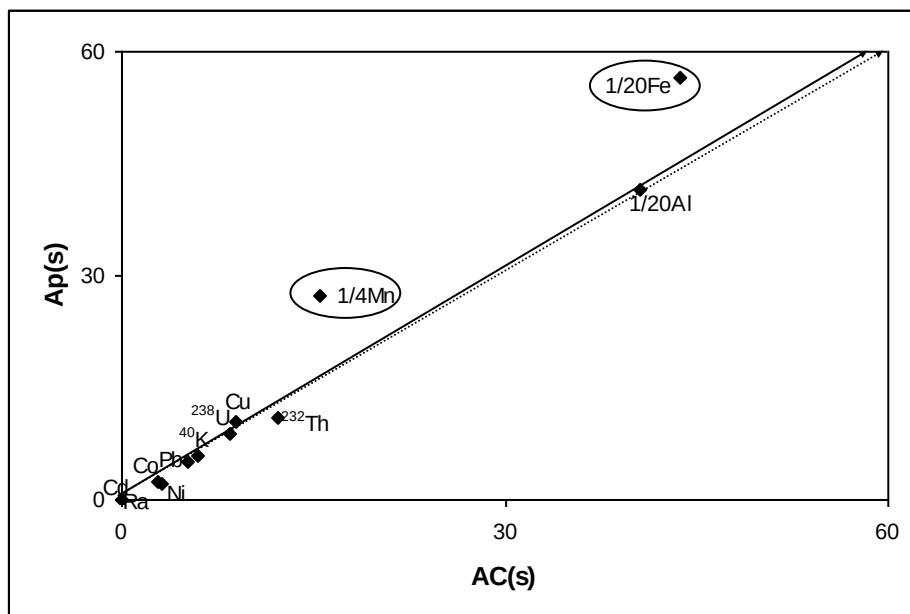


Figura 4.63: Diagrama ISOCON do “status” de formação do solo no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial $Ap(s)$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente ($AC(s)$)

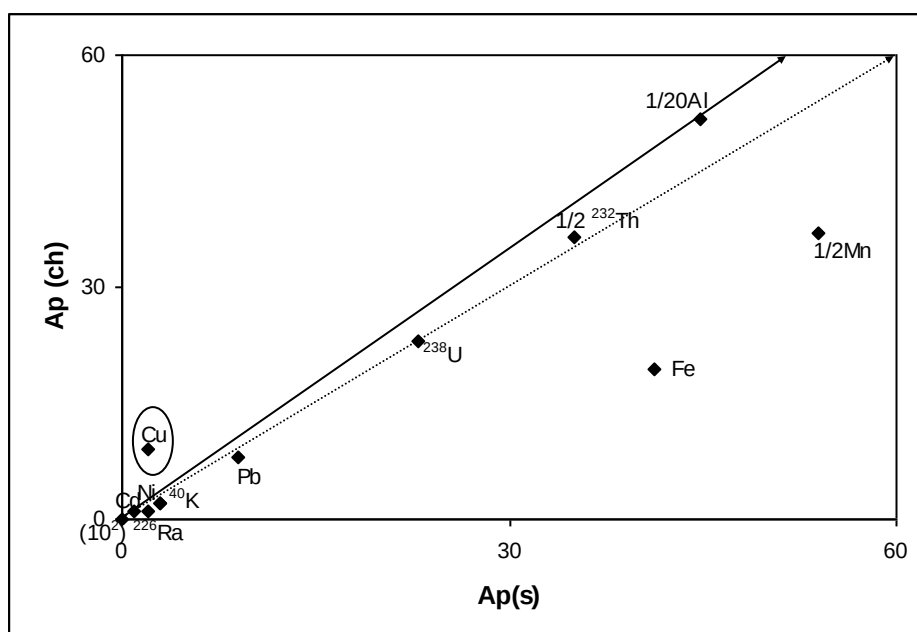


Figura 4.64: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-01, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap(ch)$) em relação à estação seca ($Ap(s)$).

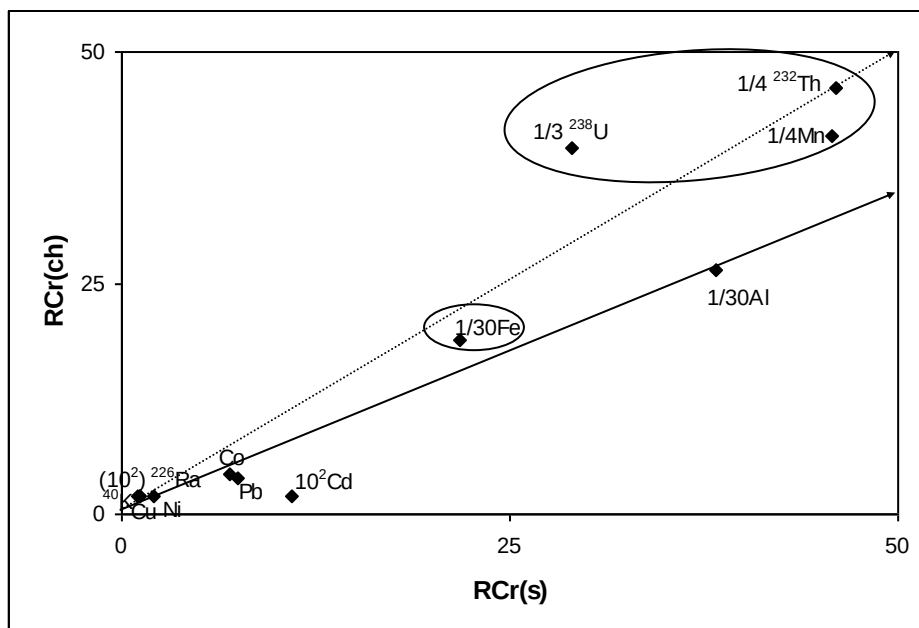


Figura 4.65: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-01, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial RCr na estação chuvosa ($RCr_{(ch)}$) em relação à estação seca ($RCr_{(s)}$).

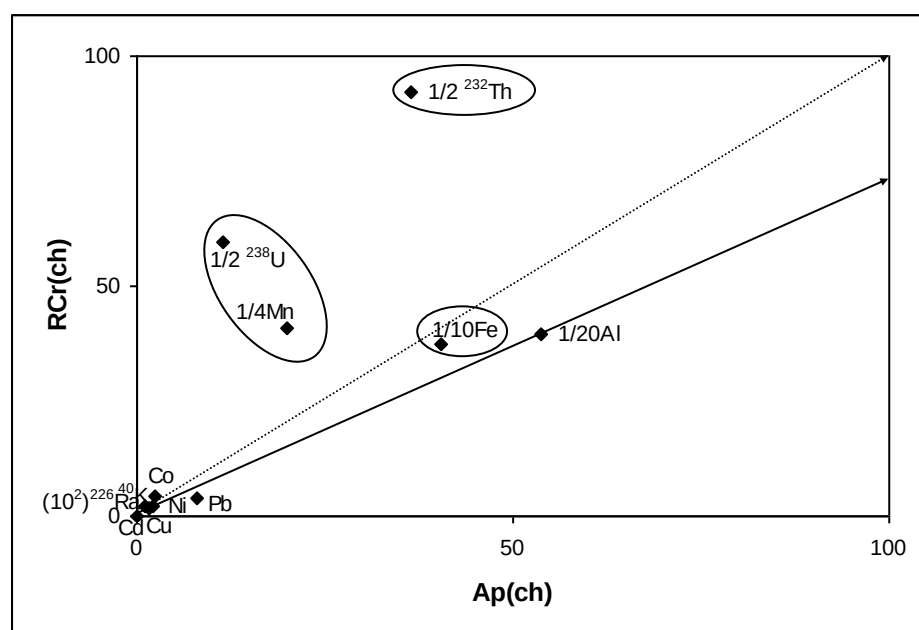


Figura 4.66: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-01, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $RCr_{(ch)}$ em relação ao horizonte superficial imediatamente sobrejacente $Ap_{(ch)}$, na estação chuvosa.

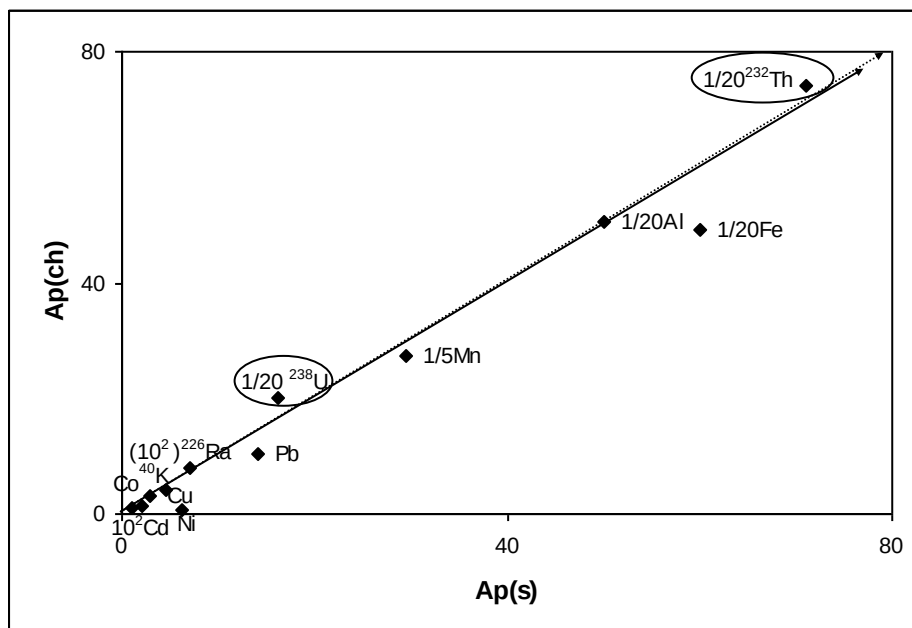


Figura 4.67: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$).

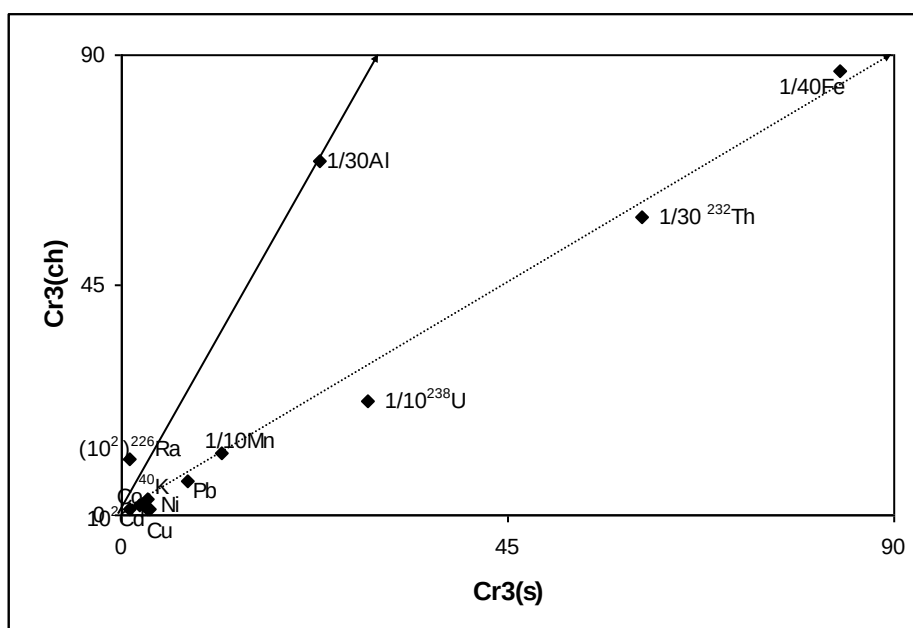


Figura 4.68: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial Cr_3 na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$) em relação à estação seca ($Cr_{3(s)}$).

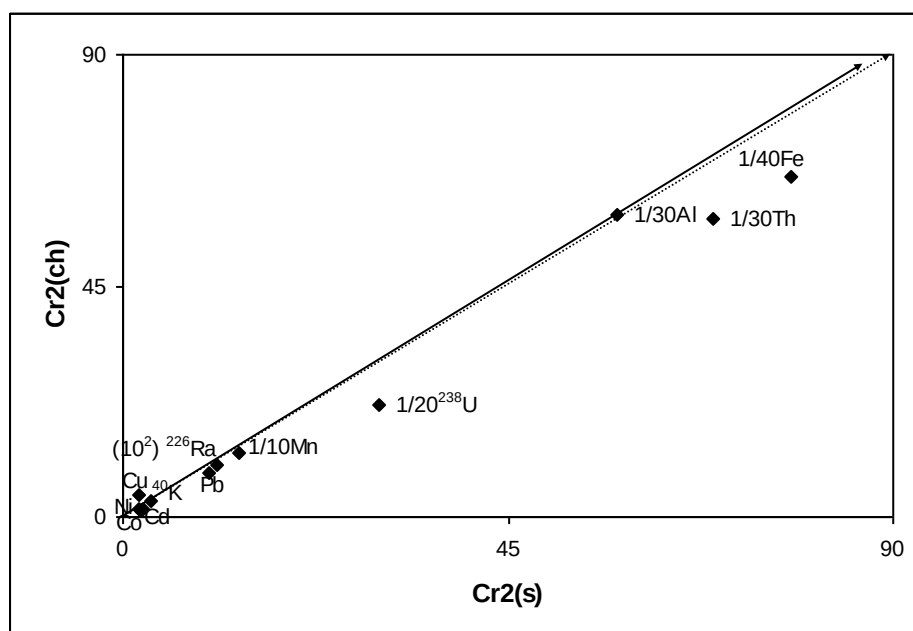


Figura 4.69: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial Cr₂ na estação chuvosa (Cr_{2(ch)}) em relação à estação seca (Cr_{2(s)}).

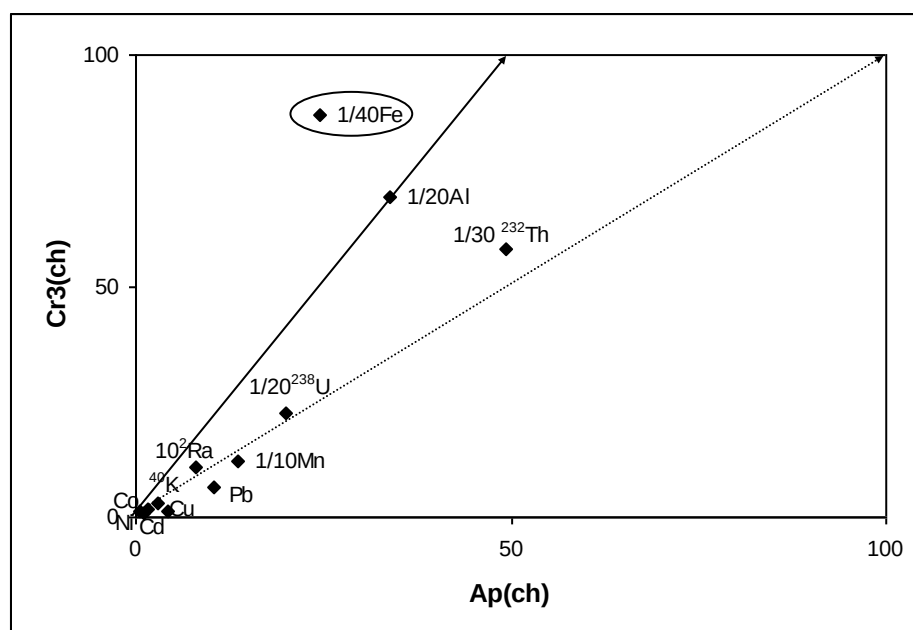


Figura 4.70: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial Cr_{3(ch)} em relação ao horizonte superficial imediatamente sobrejacente Ap_(ch), ambos na estação chuvosa.

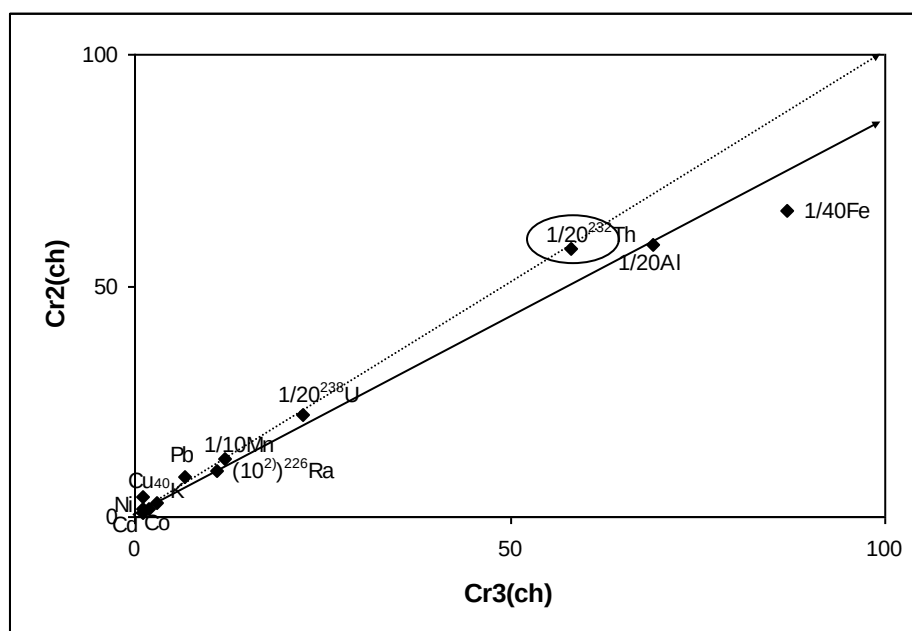


Figura 4.71: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-02, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{2(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente sobrejacente $Cr_{3(ch)}$, ambos na estação chuvosa.

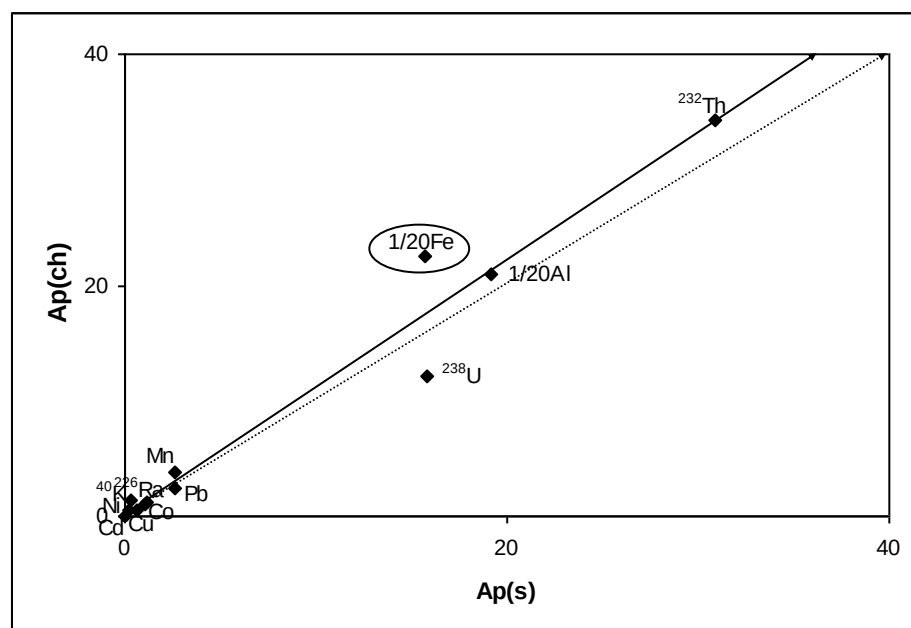


Figura 4.72: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$).

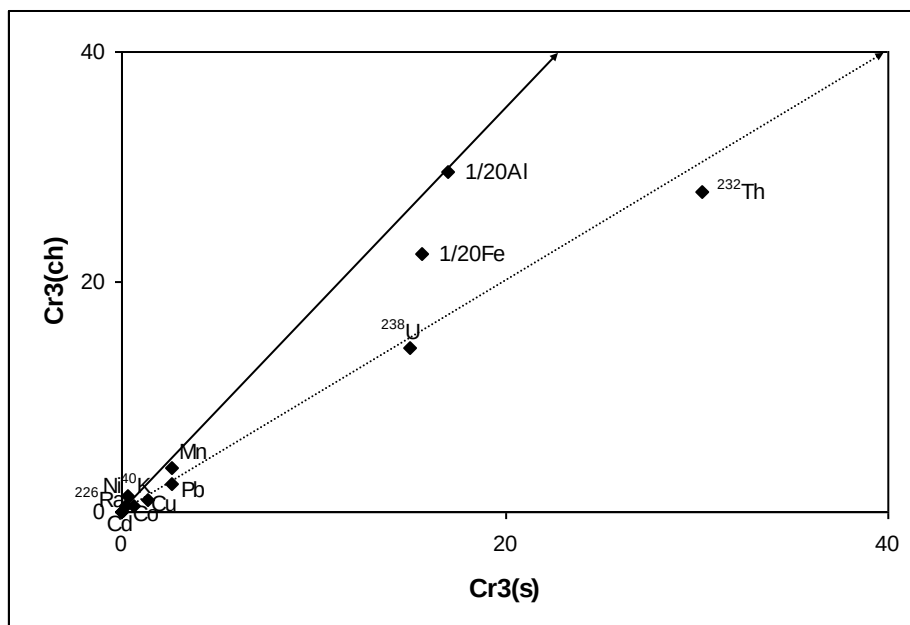


Figura 4.73: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial Cr₃ na estação chuvosa (Cr_{3(ch)}) em relação à estação seca (Cr_{3(s)}).

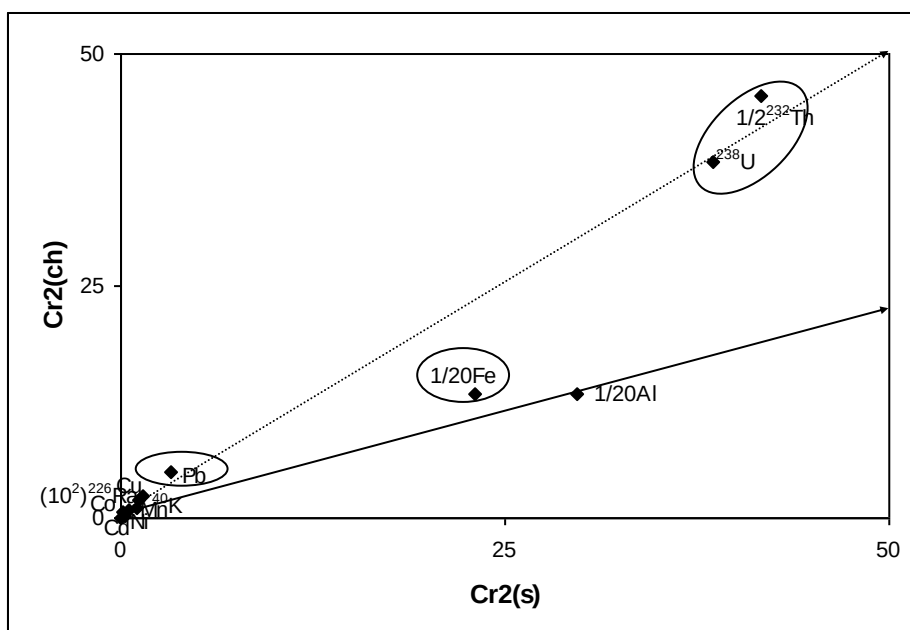


Figura 4.74: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial Cr₂ na estação chuvosa (Cr_{2(ch)}) em relação à estação seca (Cr_{2(s)}).

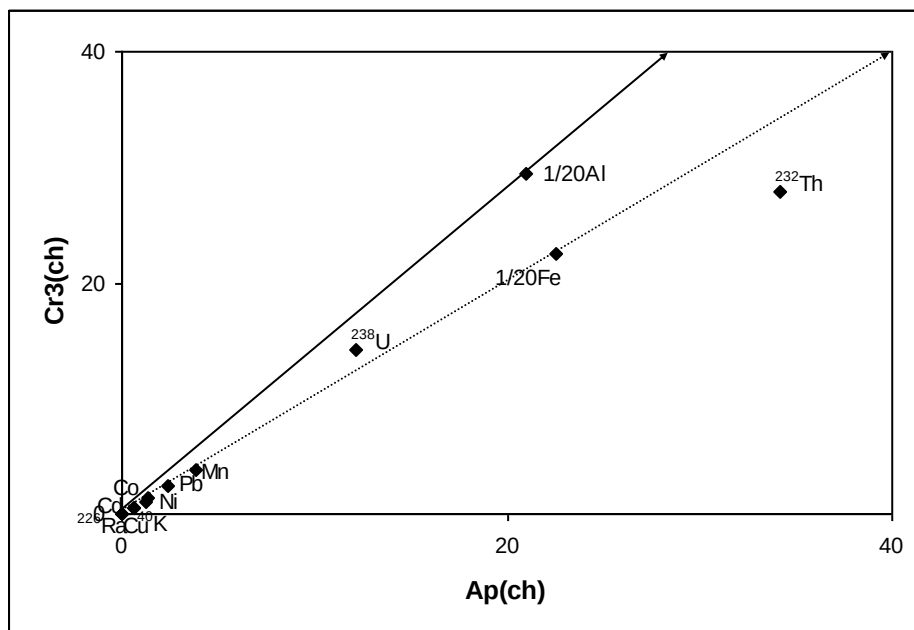


Figura 4.75: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ em relação ao horizonte superficial imediatamente sobrejacente $Ap_{(ch)}$, ambos na estação chuvosa.

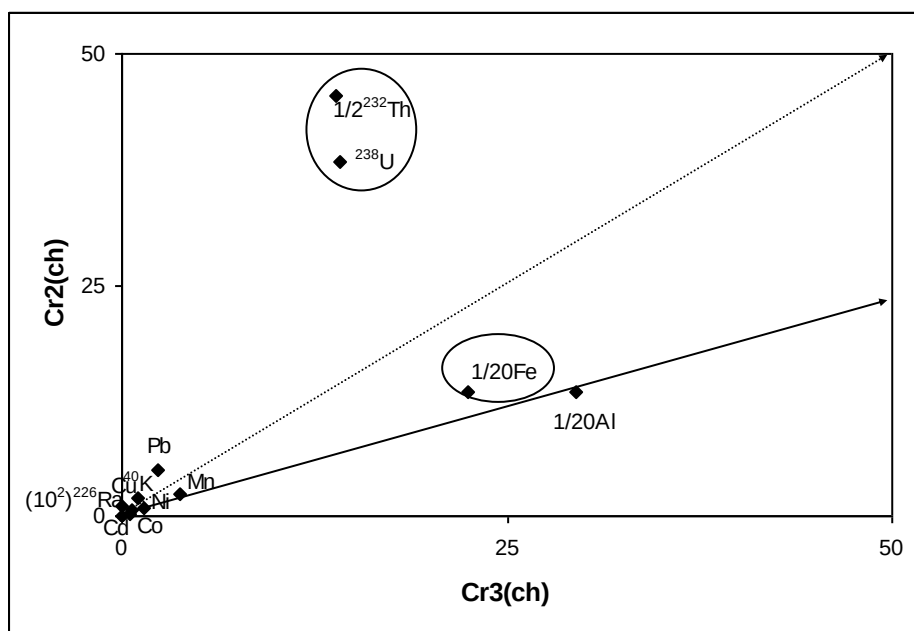


Figura 4.76: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-03, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{2(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente sobrejacente $Cr_{3(ch)}$, ambos na estação chuvosa.

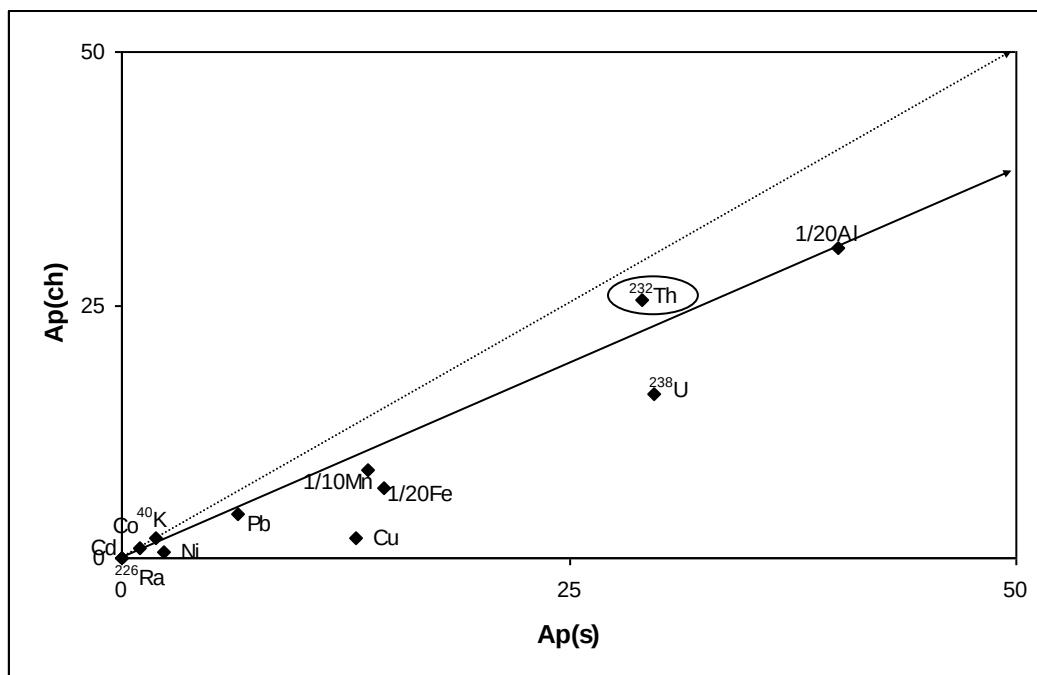


Figura 4.77: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$).

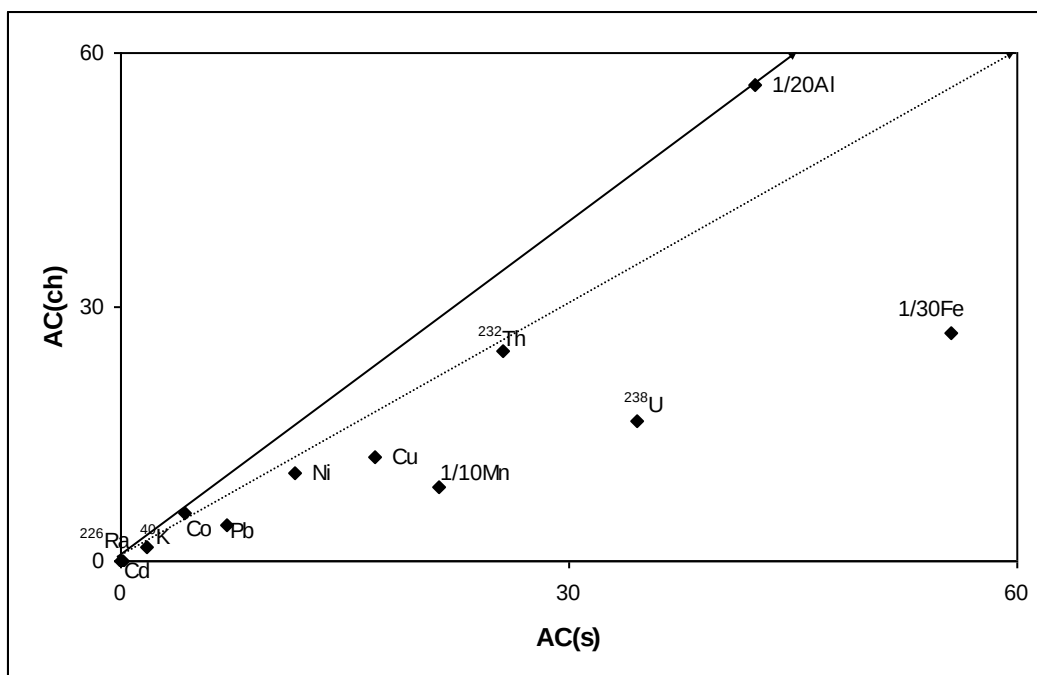


Figura 4.78: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial AC na estação chuvosa ($AC_{(ch)}$) em relação à estação seca ($AC_{(s)}$).

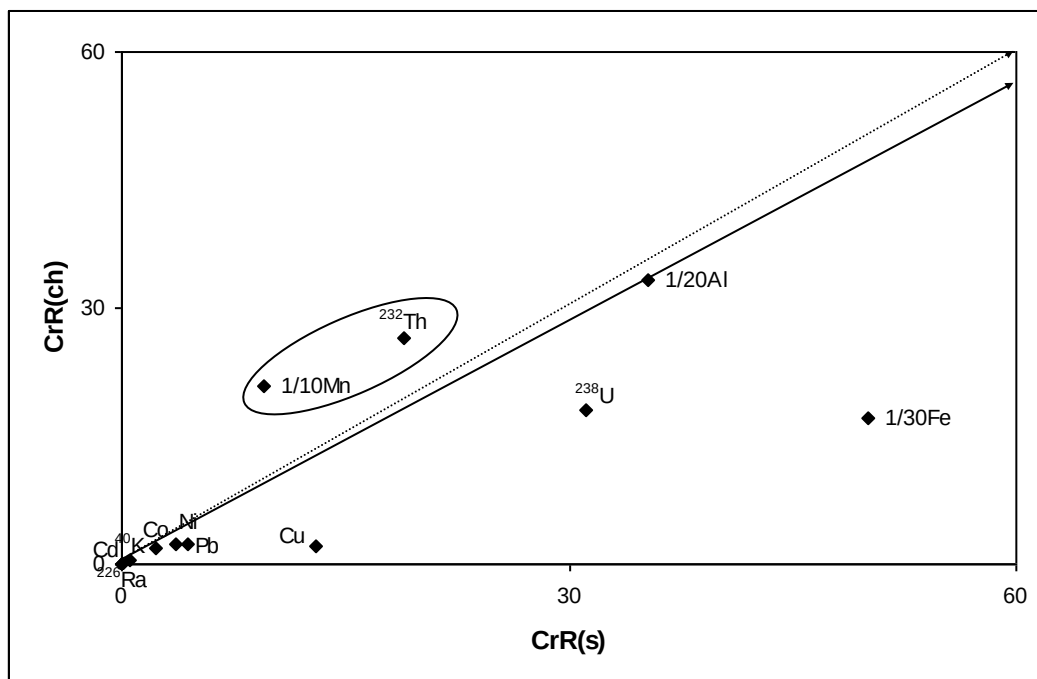


Figura 4.79: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial CrR na estação chuvosa ($CrR_{(ch)}$) em relação à estação seca ($CrR_{(s)}$).

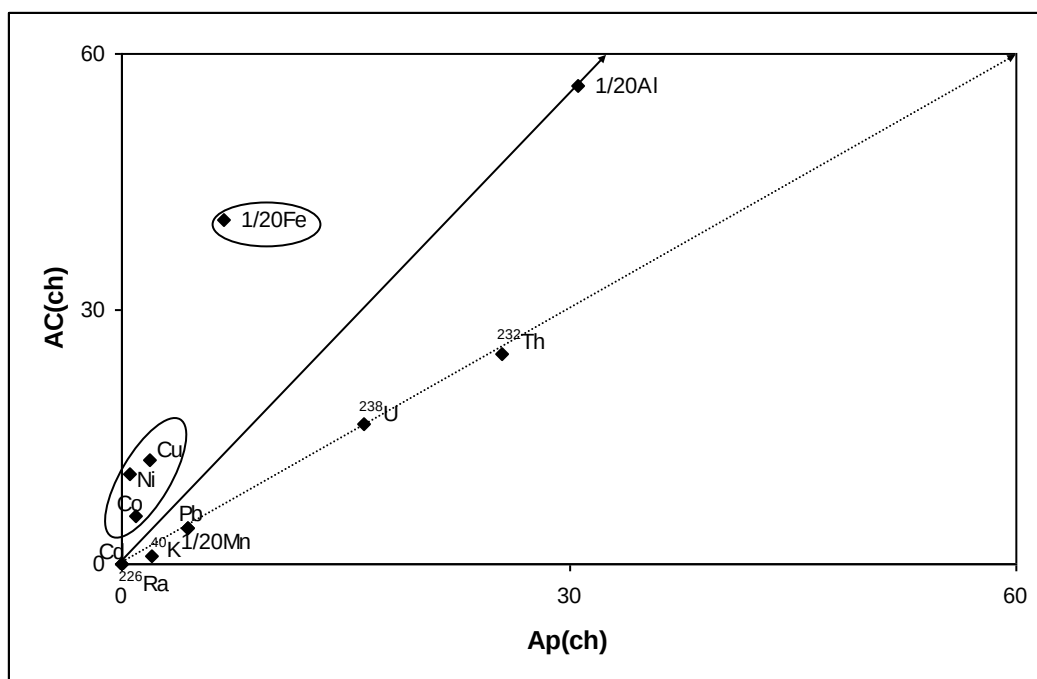


Figura 4.80: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $AC_{(ch)}$ em relação ao horizonte superficial imediatamente sobrejacente $Ap_{(ch)}$, ambos na estação chuvosa.

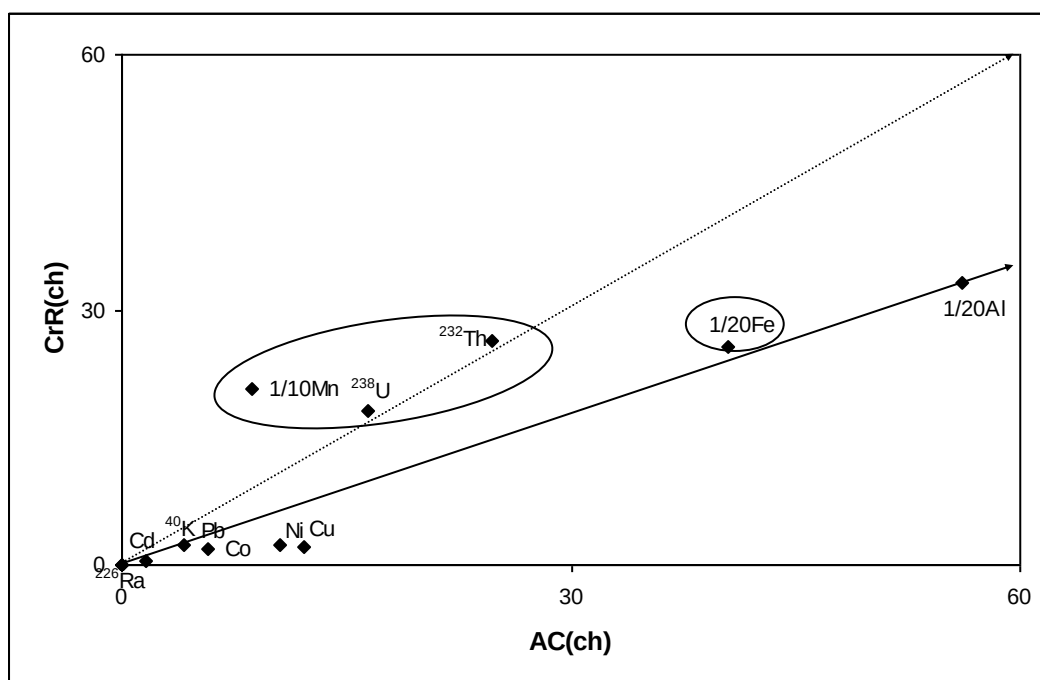


Figura 4.81: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-05, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $CrR_{(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente sobrejacente $AC_{(ch)}$, ambos na estação chuvosa.

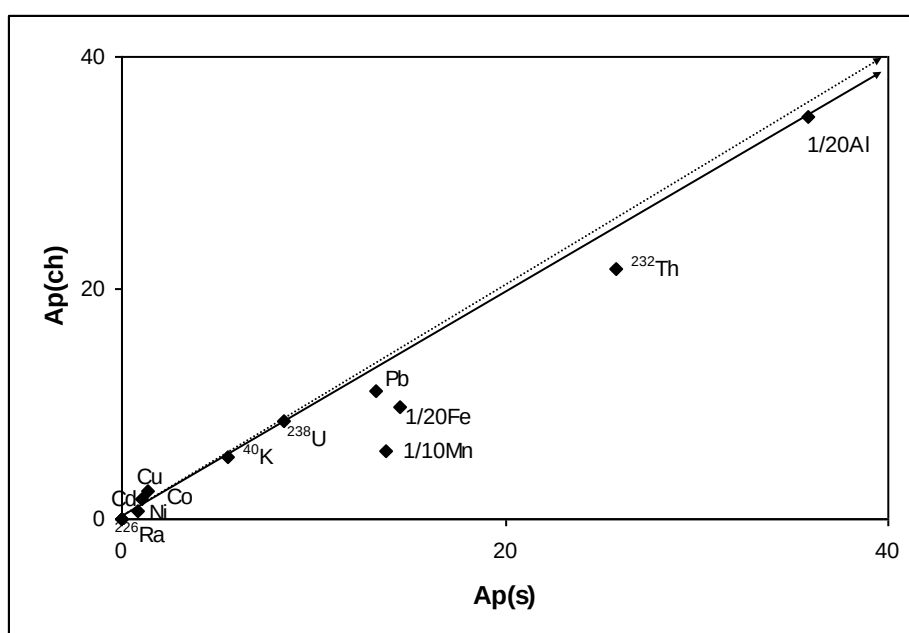


Figura 4.82: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-04, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$).

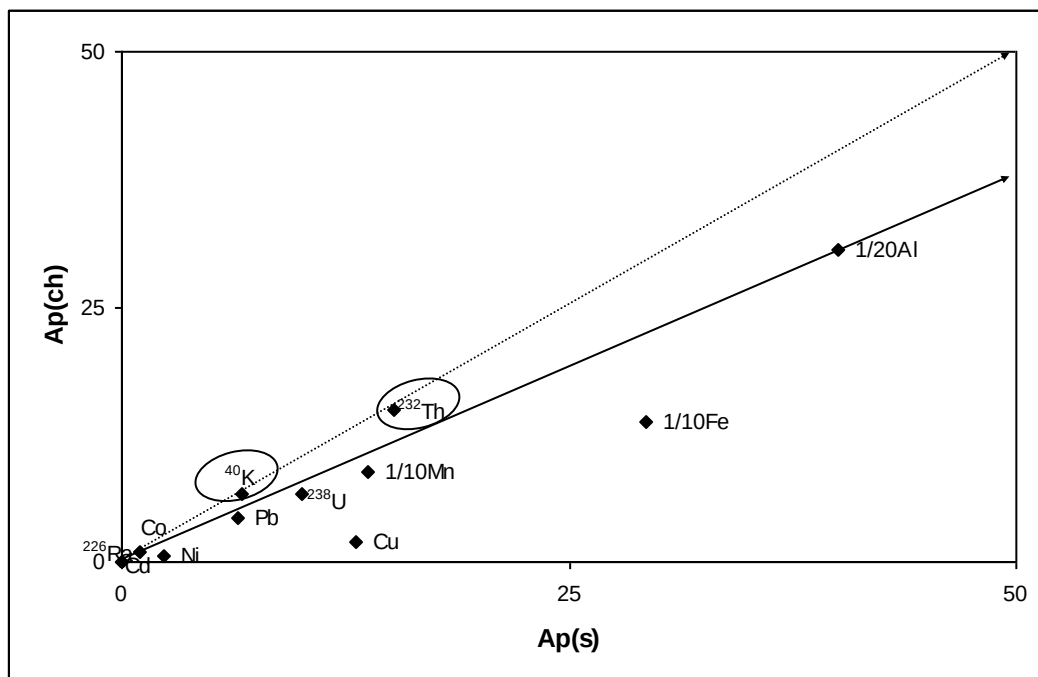


Figura 4.87: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$).

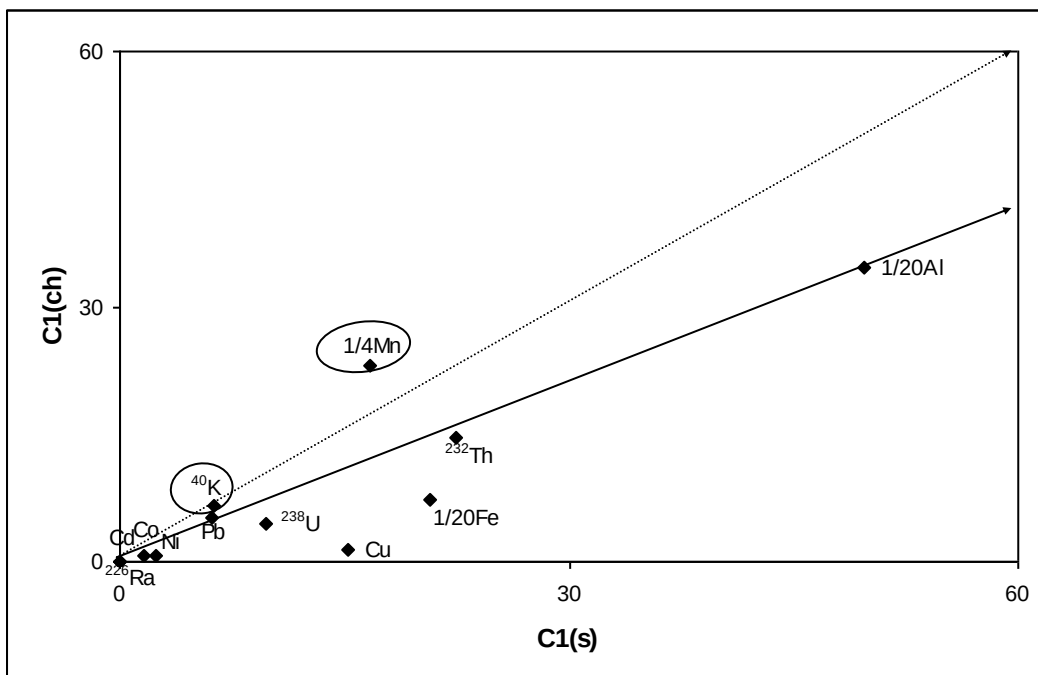


Figura 4.88: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial C_1 na estação chuvosa ($C_{1(ch)}$) em relação à estação seca ($C_{1(s)}$).

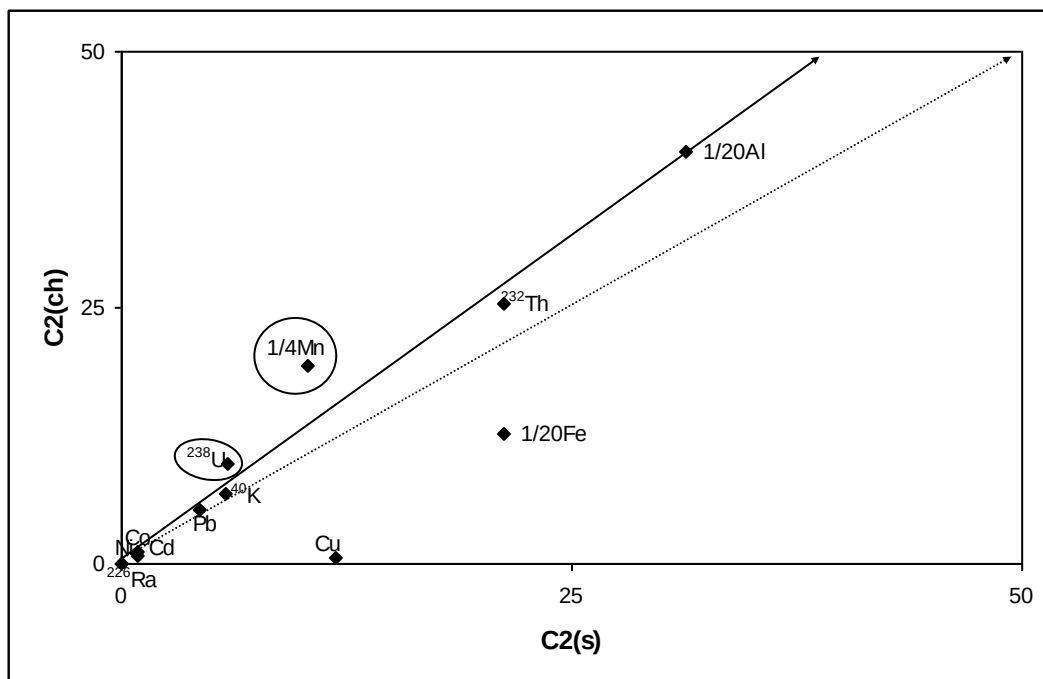


Figura 4.89: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial C_2 na estação chuvosa ($C_{2(ch)}$) em relação à estação seca ($C_{2(s)}$).

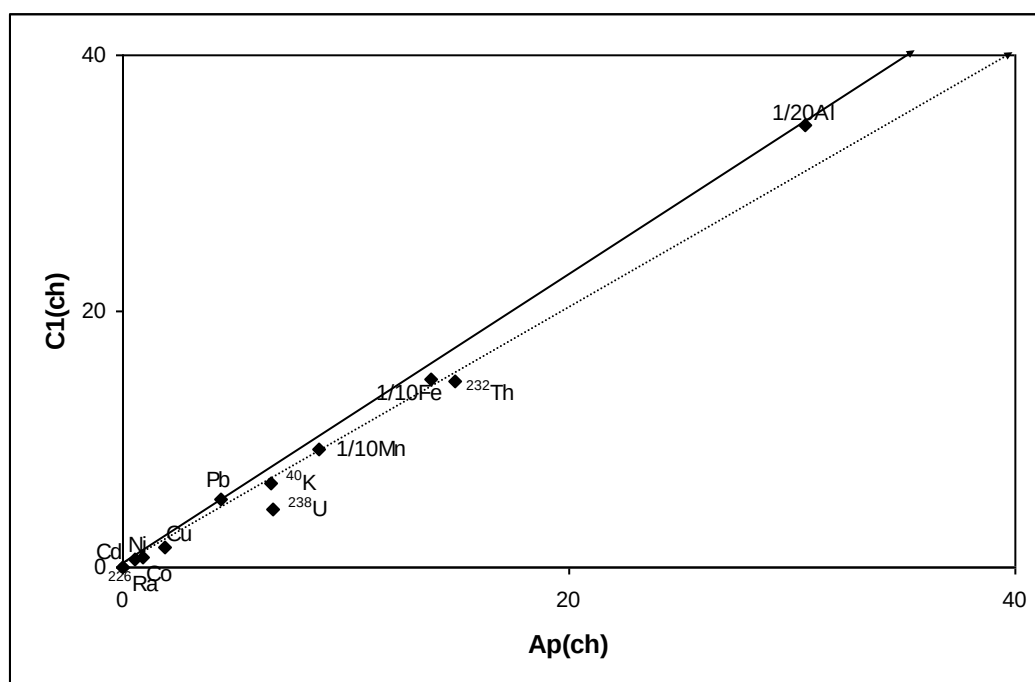


Figura 4.90: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial C_1 em relação ao horizonte superficial imediatamente sobrejacente $A_{p(ch)}$ na estação chuvosa.

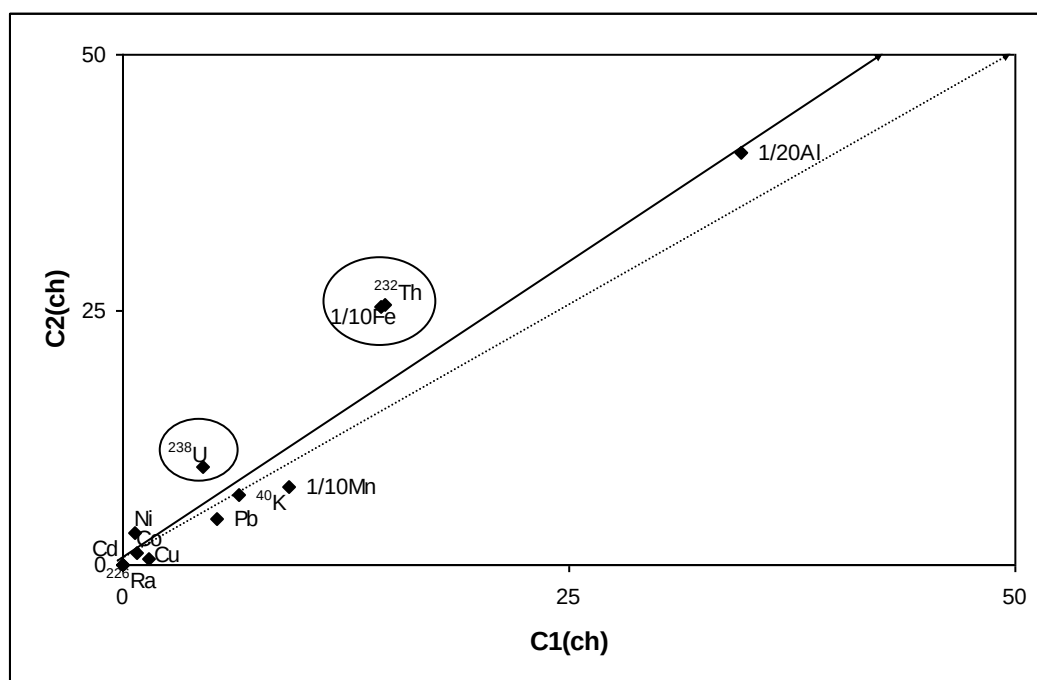


Figura 4.91: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-06, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial C_2 em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente $C_{1(ch)}$ na estação chuvosa.

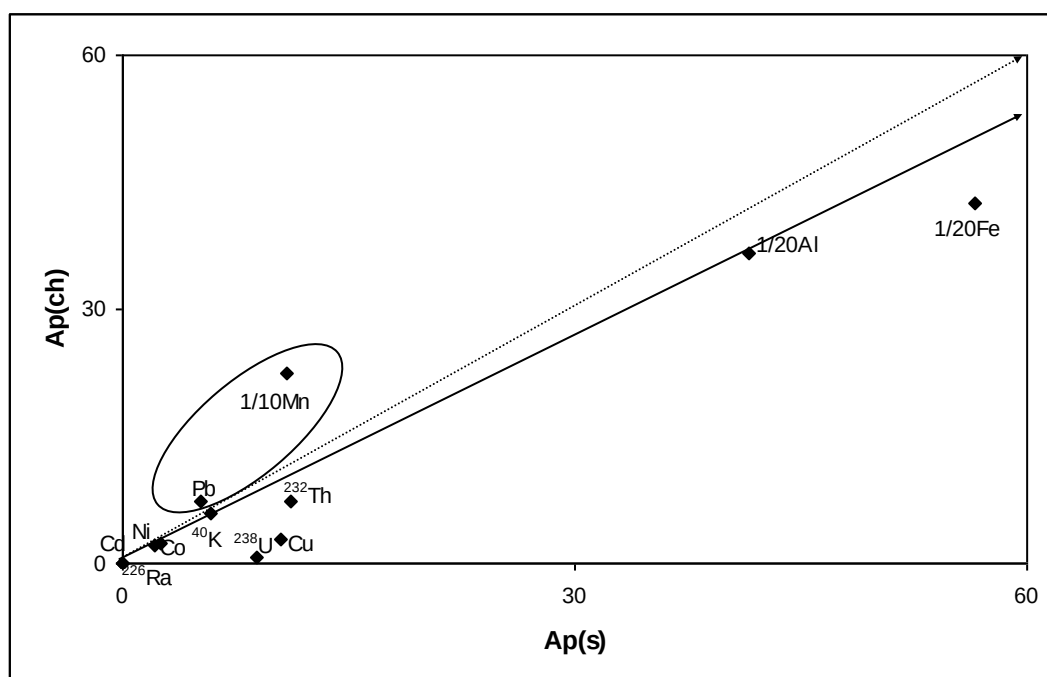


Figura 4.92: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte superficial Ap na estação chuvosa ($Ap_{(ch)}$) em relação à estação seca ($Ap_{(s)}$).

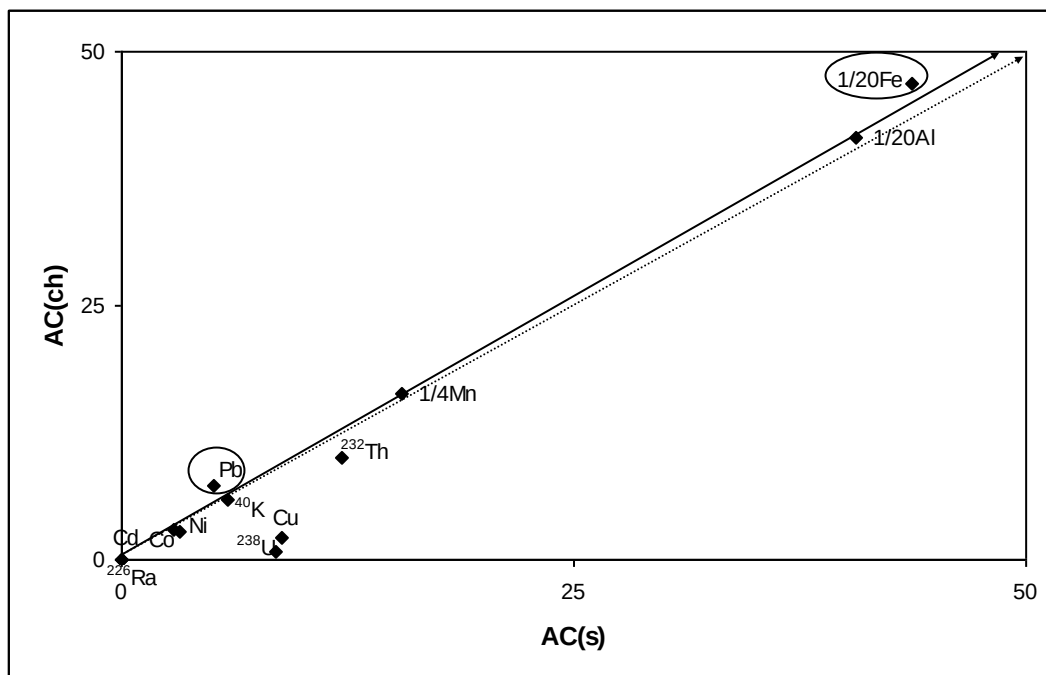


Figura 4.93: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial AC na estação chuvosa ($AC_{(ch)}$) em relação à estação seca ($AC_{(s)}$).

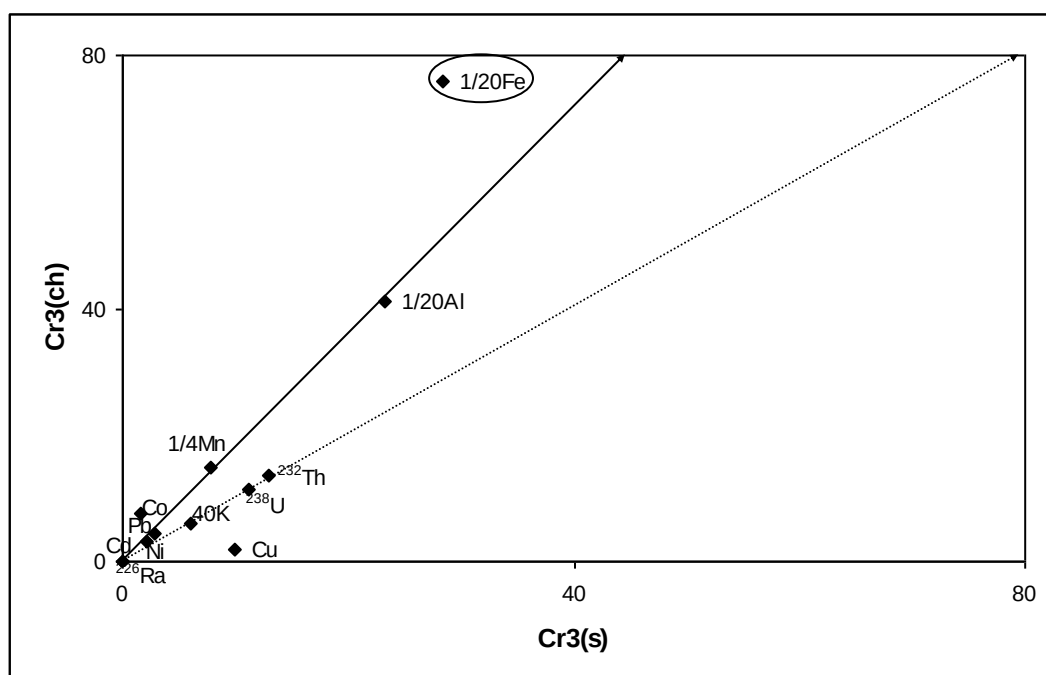


Figura 4.94: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial Cr_3 na estação chuvosa ($Cr_{3(ch)}$) em relação à estação seca ($Cr_{3(s)}$).

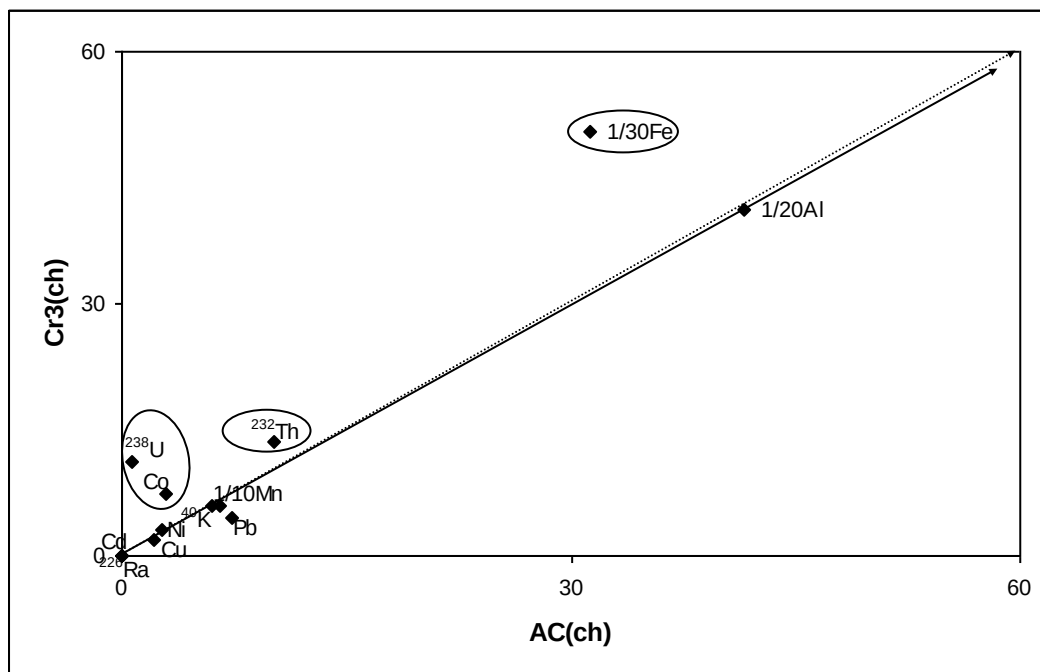


Figura 4.97: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{3(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente $AC_{(ch)}$ na estação chuvosa.

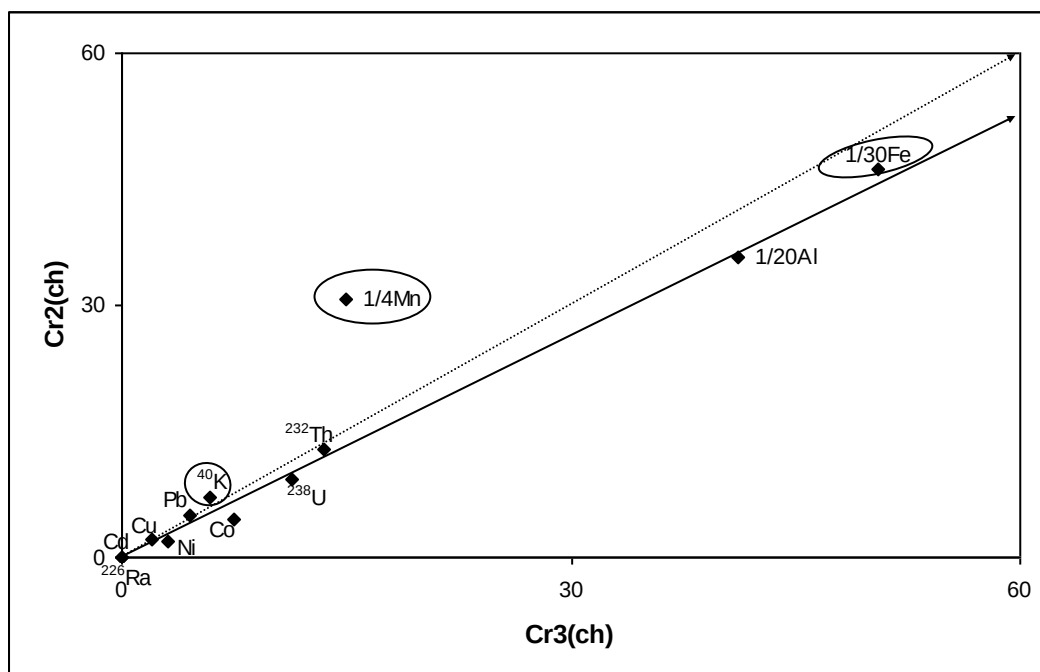


Figura 4.98: Diagrama ISOCON da mobilidade sazonal no perfil rocha-solo CAE-07, considerando as concentrações dos radionuclídeos e metais pesados no horizonte subsuperficial $Cr_{2(ch)}$ em relação ao horizonte subsuperficial imediatamente subjacente $Cr_{3(ch)}$ na estação chuvosa.