



CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA A UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

**DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA
PERNAMBUCANA, DEVIDA À PRESENÇA DE
URÂNIO E ^{226}Ra NOS CULTIVARES**

ROMILTON DOS SANTOS AMARAL

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau de
Doutor em Ciências, na Área de
Tecnologia Nuclear.

Orientador:
Dra. Barbara Paci Mazzilli

**São Paulo
1994**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
AUTARQUIA ASSOCIADA À UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA
PERNAMBUCANA, DEVIDO À PRESENÇA DE URÂNIO E ^{226}Ra NOS
CULTIVARES

Romilton dos Santos Amaral

Tese apresentada como parte dos
requisitos para obtenção do Grau
de "Doutor em Ciências", na Área
de Tecnologia Nuclear.

Orientadora: Dra. Barbara Paci Mazzilli

SÃO PAULO

1994



À meus pais, Romeu e Iracilda.

AGRADECIMENTOS

À Dra. Barbara Paci Mazzilli, pelo apoio e orientação segura.

À Professora Dra. Helen Jamil Khoury que muito contribuiu para a realização deste trabalho.

Ao Professor Ricardo de A. Lima pela ajuda nos trabalhos de campo e de laboratório.

Ao Dr. Laércio Vinhas, pelo apoio.

Ao Departamento de Energia Nuclear (DEN) da UFPE, pelo apoio no desenvolvimento deste trabalho.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares (IPEN-CNEN/SP) e a Coordenação de Aperfeiçoamento de Pessoal de Ensino Superior (CAPES), pela oportunidade de realização do Curso de Doutorado.

A Fundação de Amparo à Ciência e Tecnologia de Pernambuco (FACEPE), pela concessão da bolsa de finalização de doutorado.

A todos do GENDO-DEN-UFPE e SPA-IPEN-CNEN/SP, pelo apoio.

iii

DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA PERNAMBUCANA, DEVIDO À
PRESENÇA DE URÂNIO E ^{226}Ra NOS CULTIVARES

Romilton dos Santos Amaral

RESUMO

A região urano-fosfática da costa do nordeste do Brasil possui uma extensão de aproximadamente 150 km com uma largura média de 4 km, ao longo da costa dos Estados de Pernambuco e Paraíba. Pessoas que residem na região e usam a terra para fins agrícolas, estão expostas a níveis aumentados de radiação natural, causada pela presença de urânio e seus descendentes no ambiente. Neste trabalho foram determinadas as concentrações de urânio e ^{226}Ra em solos e em produtos agrícolas cultivados na região e que fazem parte da dieta da população do local. A ingestão anual de cada radionuclídeo e a média anual de consumo alimentar, foram usadas para determinar a dose no órgão crítico e a dose efetiva.

As análises foram obtidas por fluorimetria, espectrometria gama e pela técnica de emanção de radônio. A concentração máxima de urânio encontrada nos cultivares foi de 186 mBq/kg (úmido) e a de ^{226}Ra foi de 2.209 mBq/kg (úmido). Por outro lado, a concentração máxima de urânio total no solo foi de 300 Bq/kg (seco) e a de ^{226}Ra total foi de 240 Bq/kg (seco). O feijão foi a espécie que apresentou a maior concentração média de urânio e ^{226}Ra , o cajú apresentou a maior concentração de urânio. Não foi encontrada correlação entre as concentrações de urânio e ^{226}Ra nos cultivares e as concentrações trocáveis nos respectivos solos, nem entre si.

A ingestão diária para os residentes rurais foi de 0,82 μg de urânio e de 190 mBq de ^{226}Ra . Dessa forma as doses para o órgão crítico (osso) foram de $1,1 \times 10^{-3}$ mSv/a e $5,2 \times 10^{-1}$ mSv/a, respectivamente. Por outro lado, as doses efetiva foram de $1,6 \times 10^{-4}$ e $2,7 \times 10^{-2}$ para urânio e ^{226}Ra , respectivamente. As doses recebidas pela população rural devido a ingestão dos cultivares da região são da mesma ordem de grandeza das encontradas no Planalto de Poços de Caldas e na região fosfática do Sudoeste da Flórida. Devido à ingestão anual de ^{226}Ra encontrou-se um incremento de carcinoma de crânio de 3% e de sarcoma de osso de 1%.

DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URÂNIO-FOSFÁTICA PERNAMBUCANA, DEVIDO À
PRESENÇA DE URÂNIO E ^{226}Ra NOS CULTIVARES

Romilton dos Santos Amaral

ABSTRACT

The uranium-phosphate region in the Northeast of Brazil comprises a 150 km long, 4 km wide area along the coast of the States of Pernambuco and Paraíba. Land is used for residence as well as for agricultural activities. People living in the region are exposed to higher than normal levels of natural radiation, caused by the presence of uranium and its progeny in the environment. This study aimed to determine the concentrations of uranium and ^{226}Ra in soils as well as in locally grown vegetables that are part of the diet of the local population. The annual intake of each radionuclide and the average annual food consumption were then used to estimate both, the dose to the critical organ and the effective dose.

Analysis were carried out through fluorimetry, gamma spectrometry, and through the radon emanation technique. The maximum concentrations of uranium and ^{226}Ra found in the crops were 186 mBq/kg (wet) and 2,209 mBq/kg (wet), respectively. Maximum concentrations in soil, on the other hand, were 300 Bq/kg (dry) and 240 Bq/kg (dry) for total uranium and ^{226}Ra , respectively. Beans presented the highest average concentrations of both, uranium and ^{226}Ra , with cashew presenting roughly the same average value for uranium as that found in beans. No correlation was found between the concentrations of uranium and ^{226}Ra in the crops and the exchangeable in soil, nor between uranium and ^{226}Ra in the crops.

The daily intake for the rural population was 0.82 μg for uranium, and 190 mBq/kg for ^{226}Ra . Therefore, the doses to the critical organ (bones) were 1.1×10^{-3} mSv/y and 5.2×10^{-1} mSv/y for uranium and ^{226}Ra , respectively. The effective doses, on the hand, were 1.6×10^{-4} mSv/y and 2.7×10^{-2} mSv/y for uranium and ^{226}Ra , respectively. The doses to the rural population due to the ingestion of crops cultivated in the region are of the same magnitude of those found either in the Poços de Caldas Plateau or in the phosphate region in the Southwest of Florida. Considering the average amount of the ^{226}Ra ingested per year, a 3% increase in the rate of head carcinoma and a 1% increase in the rate of bone sarcoma were estimated.

ÍNDICE

Capítulo I

INTRODUÇÃO.....	1
------------------------	----------

Capítulo II

COMPORTAMENTO DOS RADIONUCLÍDEOS NATURAIS NO ECOSISTEMA	5
2.1. Radionuclídeos Naturais.....	5
2.2. Fontes Poluidoras.....	10
2.3. Ocorrência de Urânio e Rádio em Solos e Alimentos.....	12
2.4. Transferência de Urânio e Rádio do Solo para as Plantas.....	16

Capítulo III

MECANISMO DE INCORPORAÇÃO DO URÂNIO E RÁDIO PELO HOMEM.....	21
3.1. Mecanismo de Incorporação pelo homem.....	21
3.1.1. Incorporação do Urânio.....	23
3.1.2. Incorporação do Rádio.....	28
3.2. Dose.....	32
3.3. Risco Devido à Ingestão.....	33

Capítulo IV

MATERIAIS E MÉTODOS.....	39
4.1. Características do Local.....	39
4.2. Critério de Seleção de Amostras.....	45
4.3. Procedimento de Coleta e Tratamento das Amostras.....	46
4.4. Análise de Urânio e ²²⁶ Ra nos Solos e Alimentos.....	49
4.4.1. Fluorimetria.....	50
4.4.2. Espectrometria Gama.....	55
4.4.3. Técnica de Emissão.....	57
4.5. Fator de Transferência.....	61
4.6. Ingestão e Avaliação da Dose.....	67
4.6.1. Ingestão de Alimentos pela População.....	67
4.6.2. Avaliação da Dose.....	69
4.7. Estimativa do Risco.....	72

4.7.1. Risco Acumulado para Indução de Carcinoma de Crânio.....	73
4.7.2. Risco Acumulado para Indução de Sarcoma de Osso.....	74
Capítulo V	
RESULTADOS E DISCUSSÃO.....	77
5.1. Dados de Urânio e ^{226}Ra em Cultivares.....	77
5.2. Dados de Urânio e ^{226}Ra no Solo Associado.....	88
5.3. Avaliação dos Métodos.....	96
5.4. Fator de Transferência.....	98
5.5. Ingestão e Avaliação da Dose.....	117
5.6. Estimativa do Risco.....	121
5.6.1. Carcinoma de Crânio.....	122
5.6.2. Sarcoma de Osso.....	122
Capítulo V	
CONCLUSÕES.....	123
REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	127
APÊNDICE.....	141

LISTA DAS FIGURAS

Figura 1. Séries radioativas naturais.....	7
Figura 2. Dose anual estimada provocada por fontes naturais.....	9
Figura 3. Principais vias de transferência de radionuclídeos primordiais e seus importantes descendentes no ecossistema terrestre.....	22
Figura 4. Meia-vida biológica do urânio no osso.....	25
Figura 5. ^{226}Ra no tecido mole em função do tempo após a injeção (Indivíduos que receberam uma simples injeção intravenosa).....	29
Figura 6. ^{226}Ra no tecido mole em função do tempo após a injeção (Indivíduos que ingeriram uma atividade desconhecida).....	29
Figura 7. ^{226}Ra nos ossos em função do tempo após a injeção.....	30
Figura 8. Retenção de ^{226}Ra no corpo inteiro.....	31
Figura 9. Assimilação de ^{226}Ra no homem devido a ingestão de água em função do tempo.....	37
Figura 10. Área de ocorrência de mineralização urano-fosfática no âmbito da bacia sedimentar PE/PB.....	40
Figura 11. Coluna estratigráfica da faixa sedimentar costeira PE/PB.....	42
Figura 12. Área de ocorrência de fosfato comercial e a área delimitada para estudo.....	44
Figura 13. Visão geral dos pontos de coleta na área delimitada...	47
Figura 14. Efeito do LiF na fluorescência do urânio em NaF.....	53
Figura 15. Comparação da reprodutibilidade obtida com 100% de NaF com relação a 2% de LiF misturado com 98% de NaF.....	53
Figura 16. Sistema de emanção de ^{222}Rn	59
Figura 17a. Correlação entre urânio no solo e nos cultivares.....	83
Figura 17b. Correlação entre ^{226}Ra no solo e nos cultivares.....	83
Figura 18. Correlação entre o urânio e ^{226}Ra nos cultivares.....	84
Figura 19a. Distribuição lognormal do urânio nos cultivares.....	84
Figura 19b. Distribuição lognormal de ^{226}Ra nos cultivares.....	85
Figura 20. Correlação entre os FTs do urânio e ^{226}Ra nos	

LISTA DAS FIGURAS

Figura 1. Séries radioativas naturais.....	7
Figura 2. Dose anual estimada provocada por fontes naturais.....	9
Figura 3. Principais vias de transferência de radionuclídeos primordiais e seus importantes descendentes no ecossistema terrestre.....	22
Figura 4. Meia-vida biológica do urânio no osso.....	25
Figura 5. ^{226}Ra no tecido mole em função do tempo após a injeção (Indivíduos que receberam uma simples injeção intravenosa).....	29
Figura 6. ^{226}Ra no tecido mole em função do tempo após a injeção (Indivíduos que ingeriram uma atividade desconhecida).....	29
Figura 7. ^{226}Ra nos ossos em função do tempo após a injeção.....	30
Figura 8. Retenção de ^{226}Ra no corpo inteiro.....	31
Figura 9. Assimilação de ^{226}Ra no homem devido a ingestão de água em função do tempo.....	37
Figura 10. Área de ocorrência de mineralização urano-fosfática no âmbito da bacia sedimentar PE/PB.....	40
Figura 11. Coluna estratigráfica da faixa sedimentar costeira PE/PB.....	42
Figura 12. Área de ocorrência de fosfato comercial e a área delimitada para estudo.....	44
Figura 13. Visão geral dos pontos de coleta na área delimitada...	47
Figura 14. Efeito do LiF na fluorescência do urânio em NaF.....	53
Figura 15. Comparação da reprodutibilidade obtida com 100% de NaF com relação a 2% de LiF misturado com 98% de NaF.....	53
Figura 16. Sistema de emanção de ^{222}Rn	59
Figura 17a. Correlação entre urânio no solo e nos cultivares.....	83
Figura 17b. Correlação entre ^{226}Ra no solo e nos cultivares.....	83
Figura 18. Correlação entre o urânio e ^{226}Ra nos cultivares.....	84
Figura 19a. Distribuição lognormal do urânio nos cultivares.....	84
Figura 19b. Distribuição lognormal de ^{226}Ra nos cultivares.....	85
Figura 20. Correlação entre os FTs do urânio e ^{226}Ra nos	

cultivares.....	93
Figura 21. Correlação entre o ^{226}Ra total e trocável na profundidade A.....	95
Figura 22. Correlação entre o urânio total e trocável na profundidade A.....	95
Figura 23. Correlação entre o urânio e o ^{226}Ra trocáveis na profundidade A.....	95
Figura 24. Correlação entre o urânio total e ^{226}Ra total na profundidade A.....	95
Figura 25a. Distribuição lognormal dos FTs do urânio nos cultivares.....	103
Figura 25b. Distribuição lognormal dos FTs do ^{226}Ra nos cultivares.....	103
Figura 26a. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do ^{226}Ra em tubérculos e raízes.....	109
Figura 26b. Correlação entre o potássio trocável e os FTs de ^{226}Ra em tubérculos e raízes.....	109
Figura 26c. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do ^{226}Ra no feijão.....	109
Figura 26d. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do ^{226}Ra no feijão.....	109
Figura 27a. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do urânio em tubérculos e raízes.....	110
Figura 27b. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do urânio no feijão.....	110
Figura 27c. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do urânio em tubérculos e raízes.....	110
Figura 27d. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do urânio no feijão.....	110
Figura 28a. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do urânio nos cultivares.....	111
Figura 28b. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do urânio em tubérculos e raízes.....	111
Figura 29a. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do ^{226}Ra nos cultivares.....	112

Figura 29b. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do ^{226}Ra em tubérculos e raízes.....	112
Figura 30a. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do urânio nos cultivares.....	113
Figura 30b. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do ^{226}Ra nos cultivares.....	113
Figura 30c. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do urânio nos cultivares.....	113
Figura 30d. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do ^{226}Ra nos cultivares.....	113
Figura 31a. FTs do urânio nos cultivares em função do pH.....	114
Figura 31b. FTs do ^{226}Ra nos cultivares em função do pH.....	114
Figura 31c. FTs do urânio em tubérculos e raízes em função do pH.....	114
Figura 31d. FTs do ^{226}Ra em tubérculos e raízes em função do pH.....	114

LISTA DAS TABELAS

Tabela 1. Absorção gastrointestinal de urânio no homem, baseado em dados ambientais.....	26
Tabela 2. Consumo alimentar domiciliar "per capita" anual em kg..	70
Tabela 3. Concentração de urânio e ^{226}Ra em cultivares da região urano-fosfática de Pernambuco.....	78
Tabela 4. Média aritmética e faixa de variação da concentração de urânio e ^{226}Ra nos cultivares.....	87
Tabela 5. Concentração de urânio e ^{226}Ra no solo.....	89
Tabela 6. Concentração de ^{226}Ra em gêneros alimentícios (peso úmido) e solo de regiões de alta radioatividade natural.....	97
Tabela 7. Fator de transferência para urânio e ^{226}Ra em diferentes espécies de acordo com o local de cultivo.....	100
Tabela 8. Comparação de resultados deste trabalho com os encontrados na literatura.....	105
Tabela 9. Quantidade de matéria orgânica, cátions trocáveis e pH na primeira profundidade (40 cm) de alguns solos.....	107
Tabela 10. Valores de ingestão diária de urânio e ^{226}Ra em algumas localidades do planeta.....	119
Tabela 11. Dose para o órgão crítico (osso) e corpo inteiro.....	120

Capítulo I

INTRODUÇÃO

Este trabalho tem como objetivos determinar as concentrações de urânio e ^{226}Ra presentes nos solos e culturas da região costeira de Pernambuco, onde existem ocorrências de minério de fosfato com comprovada concentração de urânio, e a partir destas concentrações, determinar a dose recebida pela população em decorrência da ingestão de urânio e rádio via alimentos. Avaliou-se, também, o risco de indução de sarcomas de osso e carcinoma de crânio devido à ingestão diária destes radionuclídeos.

Anomalias de alto teor de fosfato observadas por pesquisadores⁽¹⁾, em testemunhos de sondagem das camadas calcárias utilizadas para análise de água mineral foi, em 1949, o ponto de partida para a descoberta das jazidas de fosfatos marinhos na região costeira do nordeste do Brasil.

Pesquisadores da Divisão de Mineralogia do Departamento Nacional de Produção Mineral (DNPM) constituíram uma equipe juntamente com os descobridores da fosforita e, em janeiro de 1952, foi iniciada a sondagem da região para o reconhecimento da extensão e dos teores desses depósitos fosfóricos⁽¹⁾.

As pesquisas, realizadas na faixa sedimentar costeira pernambucana, mostraram a existência de urânio associado às jazidas de fosfato numa faixa que se estende de Pernambuco ao Rio Grande do Norte, com uma largura média de 4 Km. No estado de Pernambuco existem várias cidades localizadas sobre estas jazidas.

Estudos realizados por diversos autores⁽¹⁻⁴⁾ mostraram que a concentração de urânio nestas jazidas está na faixa de 10 a 530 ppm de U_3O_8 , apresentando uma concentração média que varia entre 150 e 200 ppm, dependendo da jazida investigada.

Atualmente existe uma grande preocupação em avaliar as concentrações de radionuclídeos naturais e sua contribuição na dose recebida pela população, especialmente a que reside em locais de alta radiação de fundo. Isto porque a radioatividade natural é responsável por aproximadamente 70%⁽⁵⁾ da dose recebida pela população do planeta devido a todas as fontes (naturais e artificiais). Várias fontes contribuem para a irradiação natural do ser humano, entre elas estão a radiação cósmica e os radionuclídeos primordiais. As mais importantes fontes terrestres são: ^{40}K , ^{87}Rb e as duas séries de elementos radioativos provenientes do decaimento do ^{238}U e do ^{232}Th .

Tendo em vista que na região da fosforita do Nordeste Brasileiro há uma elevada densidade demográfica sobre a jazida, tornou-se de suma importância a realização deste trabalho, pois

permitiu obter informações importantes do ponto de vista radioecológico, produzindo um banco de dados necessário para avaliar futuras alterações provocadas pelo homem. Convém ressaltar que até hoje não foi feito levantamento dos níveis de urânio e rádio em amostras de água, solo e produtos agrícolas cultivados na região e que, portanto, não existem dados relativos à avaliação de dose a que a população está exposta.

A concentração média de U_3O_8 nas jazidas deixou clara a necessidade de verificação dos níveis de urânio nos produtos agrícolas e solos da região. Além disso, sendo o ^{226}Ra precursor de radionuclídeos importantes (^{222}Rn , ^{210}Pb e ^{210}Po), emissor alfa de meia-vida longa (1620 anos), e de fácil assimilação orgânica, sua importância radiológica é grande, motivo pelo qual optou-se por avaliar seus níveis nos cultivares. Também levou-se em consideração os tipos de amostras a serem analisadas, pois segundo a literatura, a incorporação do rádio nos produtos agrícolas é mais acentuada do que a dos seus descendentes.

A transferência de urânio e rádio para espécies de plantas nativas e importadas, que são cultivadas na região fosfática de Pernambuco, pode ser um importante mecanismo de transporte para estes contaminantes na cadeia alimentar. A transferência de rádio para muitas espécies de plantas foi descrita em outras áreas de alta radiação de fundo^(6,7,8-12).

Neste trabalho foram determinadas as concentrações do urânio e ^{226}Ra em solos e alimentos (cereais, leguminosas, frutas, tubérculos e raízes) que são cultivados nos locais das jazidas de fosfato. Também avaliaram-se os fatores de transferência de radionuclídeos do solo para as culturas, confrontando-os em culturas da mesma espécie e de espécies diferentes procedentes do mesmo local e de locais diferentes. Assim, foram analisadas as influências de cátions, pH e matéria orgânica sobre estes fatores. Esse trabalho também constitui uma base para estimar os níveis de ingestão desses elementos pelos habitantes da região. A assimilação de urânio e rádio foi avaliada pela determinação do urânio e ^{226}Ra , respectivamente, em cultivares de diferentes localidades da região de estudo. De posse desses resultados foram feitos os cálculos da dose interna recebida pela população devido à ingestão destes alimentos e estimou-se o aumento de incidência de câncer na população local, para comparar esses resultados com dados obtidos em outros locais de alta radiação de fundo.

Capítulo II

COMPORTAMENTO DOS RADIONUCLÍDEOS NATURAIS NO ECOSSISTEMA

2.1. RADIONUCLÍDEOS NATURAIS

O ser humano como qualquer organismo terrestre está constantemente exposto a uma certa dose de radiação natural. Várias fontes contribuem para a irradiação do ser humano, algumas delas são fontes que existem no ambiente e outras estão presentes no próprio organismo do ser humano.

A radiação terrestre pode ser encontrada em todos os compartimentos do ecossistema em vários níveis, dependendo da concentração da atividade em materiais naturais tais como: rochas, solos, água e alimentos. As mais importantes fontes terrestres são ^{40}K , ^{87}Rb e as duas séries de elementos radioativos naturais provenientes do decaimento do ^{238}U e ^{232}Th . O ^{238}U é o isótopo responsável pela maior parte da massa de urânio, pela toxicidade química e pela metade da radioatividade. Ele decai pela emissão de partículas alfa com energia inferior a 5 Mev, as quais perdem energia produzindo uma elevada ionização específica. A outra metade da radioatividade é devida ao isótopo ^{234}U , enquanto que a

contribuição radioativa devida às partículas alfa do ^{235}U , pode ser desprezada face à sua baixa concentração (0,72%) no urânio natural. Na Figura 1⁽¹³⁾ estão representadas as séries radioativas naturais do urânio e do tório.

Na cadeia de decaimento do ^{238}U encontra-se o ^{226}Ra que, juntamente com seus descendentes, é de grande importância no âmbito da proteção radiológica, porque é um elemento quimicamente similar ao cálcio, sendo portanto, facilmente incorporado no organismo humano.

Outros radionuclídeos, tais como aqueles pertencentes à série do ^{235}U , têm pequeno efeito na exposição à radiação natural. As atividades do ^{232}Th e do ^{40}K em rochas fosfáticas de todos os tipos são similares às observadas normalmente nos solos, ao passo que as concentrações de ^{238}U e seus produtos de decaimento tendem a ser elevadas em depósitos fosfáticos de origem sedimentar⁽¹⁴⁾. O ^{238}U e seus produtos de decaimento são geralmente encontrados em equilíbrio radioativo em minérios de fosfato. Uma típica concentração de ^{238}U em depósitos fosfáticos sedimentares é 1.500 Bq/kg de minério.

A maior parte da radiação recebida pelo ser humano provém das fontes naturais, quer por exposição externa ou interna. A exposição externa é devida à radiação extraterrestre e aos radionuclídeos naturais existentes no ambiente; enquanto que a

exposição interna é devida aos radionuclídeos presentes no corpo humano em decorrência de atividade biológica ou incorporados via inalação ou ingestão de alimentos e água.

A radioatividade presente em certas rochas e no solo é a principal fonte de irradiação externa terrestre. Geralmente rochas ígneas tais como granitos são mais radioativas que rochas sedimentares, porém, existem exceções como são os casos de argilas xistosas e rochas fosfáticas que apresentam alta radioatividade. Deve-se salientar, também, que as rochas metamórficas têm concentrações idênticas às rochas das quais elas se originaram.

A maior parte da irradiação interna, devida às fontes terrestres, é provocada pelo radônio (e seus descendentes) que é um gás inerte e inodoro produzido pelo decaimento do rádio presente nas séries naturais. A irradiação interna devido às fontes terrestres, além do radônio e descendentes, é causada também, pela ingestão do potássio-40. Comparada com a exposição de radônio, sua contribuição para o nível de dose média anual é pequena⁽⁵⁾. Como a ingestão de potássio-40 é homeostaticamente controlada pelo corpo, a faixa de variação é baixa, enquanto que, o tipo de dieta pode influenciar a exposição interna decorrente da ingestão do ^{210}Pb e do ^{210}Po . A concentração média de potássio para um homem adulto é de cerca de 2 g de potássio por kg de peso do corpo⁽¹⁴⁾. A percentagem de ^{40}K é $1,18 \times 10^{-2}$ e a atividade média no corpo é cerca de 60 Bq/kg. As séries radioativas naturais (^{238}U e ^{232}Th) contribuem com 70% para

a dose anual provocada por fontes naturais. A radiação terrestre é a maior fonte de radiação natural, contribuindo com mais de 84% da dose média anual. Na Figura 2⁽⁵⁾, pode-se ver as percentagens da dose anual estimada devida às fontes naturais.

O radônio flui da terra em todas as partes, entretanto, seus níveis no ambiente variam muito de um lugar para outro. O nível de exposição ao radônio aumenta em ambientes fechados. Em

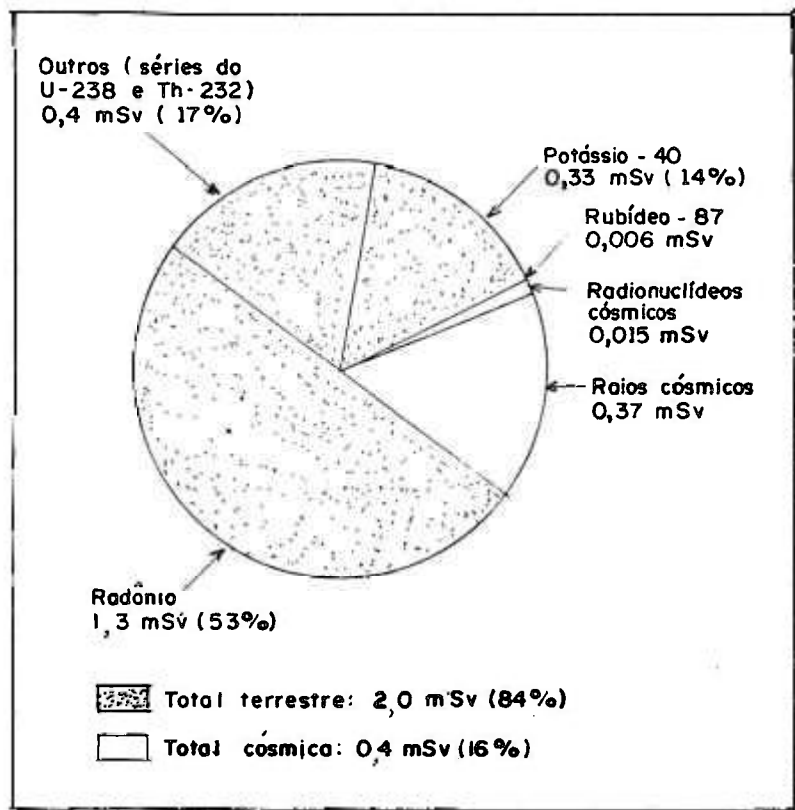


Figura 2. Dose anual estimada provocada por fontes naturais⁽⁵⁾

regiões temperadas, a concentração de radônio no interior dos edifícios é em torno de oito vezes superior à existente no exterior. Não se tem conhecimento de valores em regiões tropicais, como exemplo o Nordeste do Brasil. Nessa área, devido ao clima ser mais quente e as residências permanecerem a maior parte do tempo abertas, é possível que a concentração no interior destas não seja muito diferente da existente no exterior.

O homem recebe em média uma dose aproximada de 330 μSv por ano⁽⁵⁾, devida ao ^{40}K incorporado junto com o potássio não radioativo, que é um elemento químico essencial para o organismo. Contudo, a maior parte da dose provém de radionuclídeos resultantes da desintegração do ^{238}U e em menor valor do ^{232}Th . Uma parte muito pequena da dose provém de radionuclídeos, como ^{14}C e ^3H , produzidos pela radiação cósmica.

2.2. FONTES POLUIDORAS

O nível de radiação no meio ambiente é alterado pelas atividades humanas relacionadas com a geração de energia nuclear, o uso de radioisótopos na medicina, os testes atmosféricos de armas nucleares e os processos industriais envolvendo radionuclídeos naturais.

O uso de radiação na área médica, quer para o diagnóstico ou a terapia, é a parte de maior contribuição na dose recebida pelo

homem⁽⁵⁾ devida a fontes artificiais. Por outro lado, os testes de armas nucleares realizados desde 1945, com explosões na atmosfera, contribuíram para a contaminação do meio ambiente, via "fallout", com algumas centenas de radionuclídeos⁽⁵⁾. Destes radionuclídeos somente quatro são de interesse para o presente e o futuro da população, que são: ^{14}C (meia-vida de 5730 anos), ^{137}Cs (meia-vida de 30 anos), ^{90}Sr (meia-vida de 28,5 anos) e ^3H (meia-vida de 12 anos).

Os processos industriais, tais como produção de energia geotérmica e mineração de fosfato, conduzem para a superfície da terra minérios com concentrações de radionuclídeos naturais acima da média. Além disso, outros processos tais como combustão de carvão e produção de fertilizantes fosfatados contribuem para o aumento da concentração de radionuclídeos naturais nos seus produtos; uma vez que as cinzas de carvão possuem várias aplicações, entre as quais a produção de cimento, concreto e fertilizante.

A geração de energia nuclear, por sua vez, também contribui para a contaminação do meio ambiente com materiais radioativos. Em média, a dose anual para todas as práticas no ciclo do combustível nuclear é somente uma mínima fração (menor que 0,1%) da dose devida à radiação natural⁽⁵⁾.

2.3. OCORRÊNCIA DE URÂNIO E RÁDIO EM SOLOS E ALIMENTOS

A ocorrência normal de urânio nos solos é de cerca de 1 a 4 mg/kg (1 a 4 ppm) com a maioria deles apresentando uma faixa de 1 a 2 mg/kg (1 a 2 ppm)⁽¹⁵⁾. Em geral, os níveis de urânio nos solos aumenta com o acréscimo dos teores de argila e matéria orgânica. Isso é o resultado da alta afinidade que o urânio tem com essas substâncias. Solos de areia grosseira com pouca argila e matéria orgânica apresentam baixa quantidade de urânio.

A transferência de urânio do solo para as plantas é devida à água do solo⁽¹⁵⁾. A concentração em algumas espécies pode atingir 0,5% de peso seco. Algumas espécies que acumulam urânio em altos níveis são usadas como indicadores na prospecção geológica de depósitos de urânio. O pinheiro, Pinus sylvestris, é uma espécie muito conhecida em termos de acumulação de urânio, tendo Dean⁽¹⁶⁾ encontrado uma concentração média de 0,48 µg/g de cinzas nessa espécie vegetal.

Os fosfatos da Flórida contêm de 50 a 500 ppm de urânio⁽¹⁷⁾. Foi avaliado que os distritos Central e Sul da Flórida contêm $3,7 \times 10^5$ toneladas de U_3O_8 .

Admite-se que os vários radionuclídeos da série natural do urânio estejam em equilíbrio secular se a rocha hospedeira permanece como um sistema fechado. O desgaste químico da rocha

fosfática, entretanto, pode romper este equilíbrio. Devido à sua similaridade química com o cálcio, parte do rádio é dissolvido da rocha e passa para a cadeia de transporte biológico, começando pela água, plantas e animais até o homem. Em condições normais, o alimento constitui a maior fonte de ingestão diária de rádio pelo homem⁽⁶⁾.

O ^{226}Ra , descendente do ^{238}U , ocorre como constituinte traço nos minerais de rochas graníticas, metamórficas e depósitos sedimentares em mineralizações fosfáticas. A fonte de urânio em rochas fosfáticas é considerada como redeposição de urânio dissolvido em águas de antigos oceanos dos quais o fosfato foi derivado. A disponibilidade de ^{226}Ra nos solos é devida à geoquímica do urânio, que pode ser adsorvido nas argilas, reduzido pelo ferro ou matéria orgânica, ou arrastado pela precipitação do ferro⁽¹⁸⁾.

A transferência de rádio do solo para as raízes das plantas é influenciada pelo tipo e pH do solo, teor de alcalinos terrosos, teor de argila, matéria orgânica, cálcio e potássio trocáveis, espécie de planta e forma química do rádio⁽¹⁸⁾.

O ^{226}Ra , com meia-vida longa (1620 anos), pode existir por longo período de tempo após ser separado do urânio. É biologicamente significativa, precursor imediato e responsável pela contínua produção de ^{222}Rn . Os produtos de decaimento do ^{226}Ra são importantes como potencial de risco por inalação.

Traços de urânio são encontrados em quase todos os alimentos uma vez que este radionuclídeo está presente em todos os tipos de solo. Estimativas de ingestão diária de urânio via alimentos nos Estados Unidos, alcançam de 1 a 2 μg por dia^(19,20). Este urânio provavelmente resulta da absorção pelas culturas, especialmente aquelas que são desenvolvidas pelo uso de fertilizantes fosfatados. A concentração de urânio em cereais, frutas e vegetais (verduras, hortaliças) é maior do que em carne e leite. Alguns trabalhos⁽¹⁹⁾ mostraram que a concentração de urânio em alimentos cozidos é maior do que no mesmo alimento cru. A explicação dada pelos autores sugere que a adição de sal de cozinha ao alimento aumenta a concentração de urânio, uma vez que o sal possuía concentração de 40 ppb de urânio. Portanto, 5 g de sal acarretam ingestão diária de 0,2 μg de urânio.

A variação da concentração de urânio em alimentos, analisada por Hamilton⁽¹⁹⁾, foi de 0,3 a 30 ng de urânio por g de peso úmido em frutas, vegetais e grãos (crus e cozidos). Para os produtos animais tais como, carnes, peixe, aves domésticas, ovos e leite (crus e cozidos) a concentração foi de 0,0005 a 4 ng de U por g de peso úmido. As concentrações de urânio nos produtos animais foi de 1/10 ou inferior àquelas encontradas nas plantas.

As plantas que apresentam as mais altas concentrações de ²²⁶Ra são as castanhas do Pará. O ²²⁶Ra foi o emissor alfa mais encontrado neste tipo de planta⁽²¹⁾. A concentração no solo do local

tem média de 0,9 Bq/g de atividade alfa total, embora a contribuição do ^{226}Ra seja uma fração deste valor. Estas castanhas e solos associados também foram analisados por Penna-Franca et al.⁽²²⁾, que determinaram os níveis de ^{226}Ra e ^{228}Ra . Os autores aparentemente não detectaram concentrações significativamente elevadas nos solos, porém nas castanhas estas concentrações cobriram uma faixa de 30 a 52 Bq/kg. Também determinaram que esta planta tem uma elevada capacidade de absorver bário e que existe uma correlação positiva entre rádio e bário nas castanhas e em diferentes partes da planta. Sugeriram que a alta concentração de rádio nas castanhas do Brasil fosse devida ao fato do bário funcionar como carreador de rádio.

Em levantamentos dos teores de ^{226}Ra nos principais produtos agrícolas e nos respectivos solos de cultivo do Planalto de Poços de Caldas, encontrou-se que os valores mínimos e máximos de ^{226}Ra total nas amostras de solo variaram de um fator de 15, desde o valor mínimo de 900 até o máximo de 13.650 pCi/kg (33,3 a 505,05 Bq/kg) de solo seco. A fração trocável situou-se na faixa de 150 a 1.340 pCi/kg (5,55 a 49,58 Bq/kg) de solo seco, variando de um fator de 9. A percentagem de ^{226}Ra trocável em relação ao conteúdo total no solo situou-se na faixa de 2,3 a 34,5%, demonstrando disponibilidades diversas deste íon para absorção pelos vegetais. Por outro lado as concentrações de ^{226}Ra em alimentos situaram-se na faixa de 1,6 a 22,7 pCi/kg (59 a 840 mBq/kg) de peso úmido⁽⁸⁾.

Os níveis de ^{226}Ra , nos principais componentes da dieta do hemisfério norte, variam de 0,1 a 5,0 pCi/kg (3,7 a 185 mBq/kg) de peso úmido. As concentrações de ^{226}Ra em alimentos de maior consumo em três cidades dos Estados Unidos foram de 0,1 a 2,3 pCi/kg (3,7 a 85 mBq/kg) para batata e 0,7 a 4,8 pCi/kg (26 a 178 mBq/kg) de peso úmido para feijão⁽²³⁾.

Em levantamento realizado na Itália⁽²⁴⁾ para avaliar a transferência do ^{226}Ra em diferentes ambientes e comparar o comportamento do rádio com o cálcio, encontrou-se que a concentração de ^{226}Ra no solo é de 716 pCi/kg (26,49 Bq/kg) de peso seco, enquanto que, as concentrações para vegetais, batatas, e frutas foram de 0,96 , 0,50 e 0,37 pCi/kg (35,5 , 18,5 e 13,7 mBq/kg), respectivamente.

2.4. TRANSFERÊNCIA DE URÂNIO E RÁDIO DO SOLO PARA AS PLANTAS

Segundo vários autores^(20,25-28), tanto o urânio quanto o rádio são encontrados nos tecidos moles e ossos do homem e de animais em locais preferidos pelo cálcio. Sendo assim, é importante acompanhar o caminho percorrido pelo cálcio desde as plantas até sua incorporação no homem.

A presença de Ca^{2+} em baixas concentrações estimula a absorção de outros íons, como por exemplo, o K^+ . Sabe-se que o aumento do nível de Ca^{2+} na solução nutritiva contraria em parte o

efeito desfavorável da alta concentração de íons de hidrogênio no meio, a qual provoca diminuição na absorção de elementos e mesmo perda de outros da planta para o meio⁽²⁹⁾.

O cálcio é absorvido pelas raízes como Ca^{2+} sendo a absorção diminuída por altas concentrações de K^+ e de Mg^{2+} no meio, como também por excesso de N-NH_4^+ . O movimento ascendente se dá através de reações de troca em vasos condutores mais do que por fluxo de massa. O Ca^{2+} é deslocado dos sítios de troca por outros cátions como Mg, Mn, e Zn. Depois de deslocado nas folhas o cálcio se torna muito imóvel e somente pode ser redistribuído em condições especiais, como interferência externa, por exemplo.

Segundo Malavolta⁽²⁹⁾, a maior proporção do cálcio na planta encontra-se em formas não solúveis em água, ao contrário do que acontece com o potássio. Uma grande parte do cálcio insolúvel está na parede celular. Em uma mesma planta existem locais onde pode-se encontrar uma maior concentração de cálcio do que em outros, como por exemplo, algumas frutas apresentam sintomas de falta de cálcio devido ao processo de competição no qual as folhas, por transpirarem mais, absorvem uma maior quantidade de cálcio.

Para ingestão de cálcio abaixo daquela requerida como necessária para o metabolismo, a fração de absorção é inversamente proporcional à ingestão e depois disso a fração de cálcio absorvida é quase constante. A absorção gastrointestinal de outros elementos

alcalinos terrosos (bário, rádio, magnésio e berílio) também depende dos níveis de cálcio na dieta e supõe-se que eles sejam absorvidos no mesmo grau via o sistema de transporte de cálcio. A relação entre o urânio absorvido e os níveis de cálcio na dieta não foi estudada⁽²⁰⁾, porém a divalência e o pequeno raio iônico do íon uranila podem permitir que o UO_2^{2+} seja absorvido via sistema de transporte de cálcio.

O fator de transferência (FT) é normalmente apresentado como a acumulação do elemento na planta em relação ao solo. O FT do urânio para ervas, arbustos e árvores alcança de 0,0001 a 0,02 kg seco/kg úmido, ao passo que para musgos e turfa é de 0,6 a 352 kg seco/kg úmido⁽³⁰⁾.

Foi realizada uma comparação do FT e deslocamento do rádio com o cálcio, bário e estrôncio⁽¹⁰⁾. A medida da atividade alfa nos tecidos das plantas foi devida principalmente ao ^{226}Ra e ao ^{228}Ra , porém houve uma baixa correlação entre a concentração de rádio com os cátions trocáveis no solo e os existentes nos tecidos da planta. A concentração de rádio apresentou maior correlação com o bário do que com o estrôncio ou cálcio. Rádio e bário, por exemplo, foram retidos no caule mais do que os outros dois elementos. Para o trigo, a ordem decrescente de atividade alfa foi: palha > planta jovem > grão > farinha. Nas castanhas do Pará⁽³¹⁾, o endosperma da castanha tem as mais altas atividades e as relações de atividades do rádio, bário e estrôncio para cálcio foram 20

vezes maiores do que em outros tecidos. O FT de rádio foi comparado ao de outros radionuclídeos da série do urânio; o FT de rádio para as raízes de plantas cultivadas em soluções de nutrientes, foi duas a três vezes mais baixa do que de outros nuclídeos, porém seu deslocamento nos brotos foi de 50 a 200 vezes mais alto. Assim, o comportamento de rádio no sistema solo/planta foi avaliado em termos de sua similaridade com relação a íons alcalinos terrosos e outros nuclídeos da série do urânio.

A transferência de rádio para as folhas, raízes e frutos foi apresentada para duas regiões⁽⁹⁾ de alta radioatividade natural no Brasil. Com base nos dados a transferência do rádio em regiões monazíticas se apresenta como sendo limitada pela insolubilidade do mineral radioativo presente no solo. O rádio associado com a apatita da região Araxá-Tabira foi mais solúvel. Essa maior solubilidade aumenta a difusão do rádio e sua transferência para a planta. A transferência do rádio para gêneros alimentícios cultivados em regiões de alta radioatividade natural no Brasil, Planalto de Poços de Caldas, apresentou valores de ^{226}Ra uma ordem de grandeza superior à de regiões normais⁽⁹⁾. Também foram apresentados os valores do FT de 10^{-3} e 10^{-2} para a concentração de rádio total e trocável, respectivamente.

Grzybwska⁽³²⁾ sugeriu que a maior transferência de rádio para arbustos em rejeito arenoso comparado a argiloso pode ser devida à baixa quantidade de cátions trocáveis na areia. Também

encontrou uma maior transferência de rádio para a alfafa e capim em solo com baixa quantidade de matéria orgânica comparado a dois outros com alta quantidade. Segundo ele a maior massa de raízes de arbusto comparada à de capim provavelmente contribui para o mais alto valor de rádio no arbusto que cresce sobre o rejeito.

Capítulo III

MECANISMO DE INCORPORAÇÃO DE URÂNIO E RÁDIO PELO HOMEM

3.1. MECANISMO DE INCORPORAÇÃO PELO HOMEM

Os radionuclídeos presentes no meio ambiente incorporam-se ao homem por intermédio de várias vias, esquematizadas na Figura 3⁽³³⁾. Observa-se nesta figura que as vias de transferência podem ser: as plantas, água, ar, animais terrestres e aquáticos e seus derivados.

Réplicas da dieta diária de adultos foram medidas para determinar urânio em populações de duas cidades japonesas. A concentração mediana foi de 0,042 μg de U por g de cinzas de alimentos⁽³⁴⁾, sendo o teor de cinzas da dieta estimado em cerca de 35 g por dia. Assim, a ingestão total de urânio na alimentação dos adultos foi calculada em 1,5 μg de urânio por dia. A água potável contribuiu com 0,009 μg de urânio por litro.

O urânio e o rádio podem ser incorporados no organismo humano através de uma das seguintes formas:

a. por meio da ingestão de alimentos (legumes, verduras, frutas, carnes, etc.);

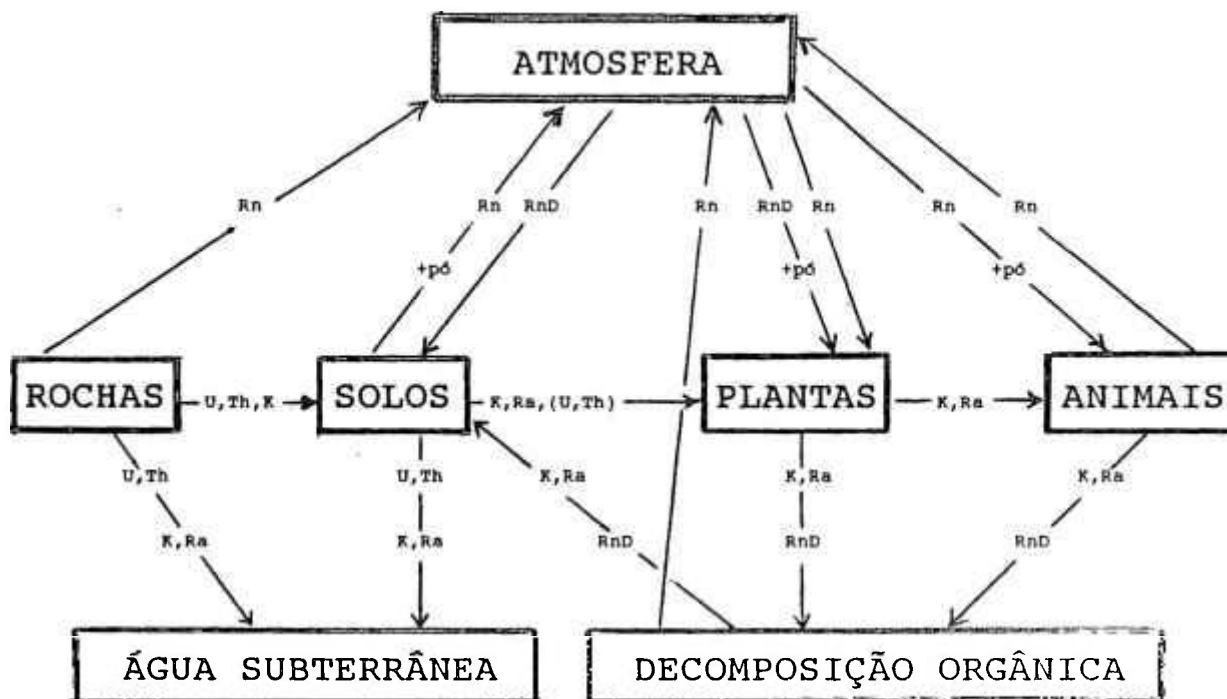


Figura 3. Principais vias de transferência de radionuclídeos primordiais e seus importantes descendentes no ecossistema terrestre⁽³³⁾. Símbolos: U = isótopos do urânio, Th = isótopos do tório, K = ^{40}K , Ra = isótopos do rádio, Rn = isótopos do radônio e RnD = descendente do radônio.

- b. por meio de ingestão da água potável e da água utilizada no cozimento dos alimentos;
- c. pela inalação quando os mesmos encontram-se no ar.

Após a ingestão e/ou inalação, o urânio e o rádio são absorvidos e passam para a corrente sanguínea. O urânio se distribui por todo corpo (tecidos moles, ossos e rins), porém o maior

acúmulo deste radionuclídeo é sempre encontrado nos ossos⁽²⁰⁾. O rádio, por outro lado, por possuir características similares ao cálcio, pode substituí-lo na constituição do osso de modo a se incorporar uniformemente. Além disso, o rádio pode também ser encontrado no cérebro. Alguns pesquisadores⁽³⁵⁾ mostraram que cerca de 90% do rádio no corpo humano encontra-se no esqueleto.

Wrenn⁽³⁶⁾ apresentou dados de ingestão de ²²⁶Ra em New York, Chicago, San Francisco, San Juan, Reino Unido, Bombay e Kerala. Em San Juan-Porto Rico e Kerala-India, a ingestão estimada com base nos hábitos alimentares locais varia de 0,7 a 2,8 pCi/dia (25,9 a 103,6 mBq/kg). Na maioria das áreas estudadas, a maior parte da ingestão de rádio foi devida aos vegetais, grãos e frutas, com a mais alta proporção (83%) em Kerala, mais baixa no Reino Unido e cerca de 75% para quatro localidades estudadas nos Estados Unidos. Não se conhece o grau de influência da forma química do rádio nos alimentos e sua disponibilidade de transferência para o aparelho gastrointestinal⁽³⁶⁾.

3.1.1. INCORPORAÇÃO DO URÂNIO

De particular importância é o grau de absorção gastrointestinal do urânio. A "United States Environmental Protection Agency" (USEPA) aconselha que seja usado o valor de 1% do urânio ingerido como a quantidade absorvida pelo organismo. Wrenn et al.⁽³⁷⁾ mostrou que a absorção no aparelho gastrointestinal

do homem alcança valores máximos de 0,9%, com média de aproximadamente 0,3%.

Wrenn⁽²⁰⁾ concluiu que a absorção gastrointestinal de urânio solúvel na alimentação normal do homem padrão (70 kg) é de cerca de 1,4%, podendo diminuir levemente com o aumento da ingestão de urânio e que de 10 a 30 mg por dia de urânio solúvel são suficientes para produzir toxicidade nos rins. A toxicidade química do urânio é exercida somente por íons hexavalentes em solução aquosa, sendo esta toxicidade dependente da concentração do U(VI) nos rins. A quantidade de U depositada nos rins depende principalmente da quantidade de U introduzida no sangue, da acidez da urina e da taxa de filtração⁽³⁴⁾. Em torno de 92 a 95% do urânio absorvido é eliminado do organismo com uma meia-vida de 2 a 6 dias, e o restante, de 5 a 8%, é eliminado com meia-vida de 30 a 340 dias. O resíduo de 5 a 8% que está livre na corrente sanguínea é, provavelmente, o responsável pela presença do urânio nos rins.

Para um período de tempo de 1 a 16 dias pós-exposição, Morrow⁽³⁸⁾ encontrou um declínio do teor de urânio nos rins que se ajusta bem a uma exponencial simples com uma meia-vida de 9,3 dias. Entretanto, em um trabalho anterior, Bernard⁽³⁹⁾ por meio de injeção intravenosa estimou que a meia-vida biológica do urânio nos ossos é de 300 dias. Baseado na investigação do osso, ele definiu que o melhor ajuste é uma exponencial simples, definida durante o período de integração de $t=0$ a $t=70$ anos após a ingestão. A Figura 4⁽³⁹⁾

apresenta a curva. Também foi conclusão deste mesmo trabalho, que os rins sofrem mais danos pela radiação do que os ossos. Os resultados de quatro estimativas de absorção de urânio no homem, obtidos de medidas de ingestão de urânio e excreção, são apresentados na Tabela 1⁽²⁰⁾.

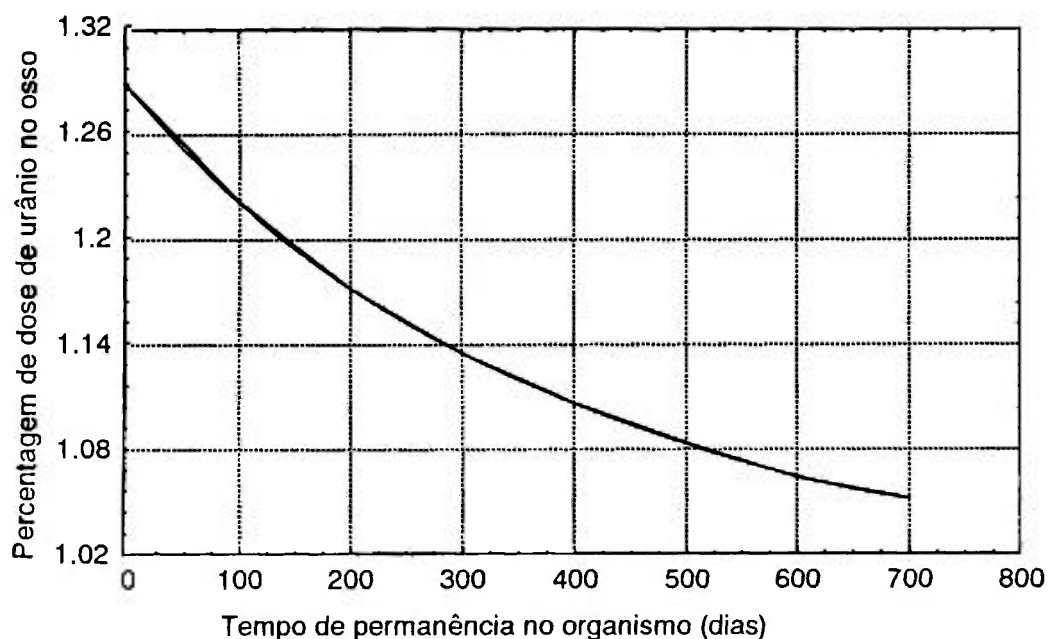


Figura 4. Meia-vida biológica do urânio no osso

Fisiologicamente o urânio encontra-se no estado estável (6+) como cátion bivalente⁽²⁰⁾ UO_2^{2+} . O processo de incorporação do urânio no osso não é idêntico ao do rádio. O urânio deposita-se a partir da superfície, redistribuindo-se lentamente em direção ao centro do osso (medula). Trabalhos realizados por Stevens⁽⁴⁰⁾

Tabela 1. Absorção gastrointestinal de urânio no homem, baseada em dados ambientais.

INGESTÃO ESTIMADA PARA URÂNIO ($\mu\text{g U/kg-dia}$)	ABSORÇÃO GASTROINTESTINAL (%)
0,025	7,8
0,15	1,6
0,34	0,76
0,76	2,2

mostraram que $^{233}\text{U(VI)}$ em citrato injetado em cães, deposita-se inicialmente em toda superfície do osso. O teor de urânio decresce lentamente em direção à medula do osso onde tem baixa concentração. Após um ano, a redistribuição ou difusão (ou ambos) de urânio no osso tem produzido uma distribuição mais uniforme, semelhante porém não idêntica à do $^{226}\text{Ra}^{(40)}$. Em ossos de cães que nunca foram expostos a emissores internos além daqueles que ocorrem naturalmente no ar, alimento e água, o ^{235}U é uniformemente distribuído por toda parte do osso⁽⁴¹⁾.

A concentração de urânio nos tecidos humanos obtidos por meio de autópsias foi recentemente revisada^(20,42) e foram feitas estimativas sobre concentração nos tecidos moles e ossos humanos. A variação da quantidade de urânio no esqueleto humano (2 a 62 μg)

é atribuída às variações geográficas e às incertezas analíticas. Acredita-se que, a grosso modo, o urânio no esqueleto está em equilíbrio com o que é ingerido. Uma melhor estimativa é que o esqueleto de um homem de referência pesando 70 kg conterá aproximadamente 25 μg de U. Isto é aproximadamente equivalente à quantidade de U que seria ingerida em 11 dias de ingestão de alimentos e água cujas concentrações de urânio fossem da ordem das concentrações médias encontradas nos Estados Unidos. O osso é o maior local de acumulação de urânio em todas as espécies mamíferas, independente da via de sua transferência para o organismo animal⁽²⁰⁾. A relação entre a concentração de urânio do corpo humano e os níveis de urânio no ambiente (alimento, água, e ar) ainda não foi claramente estabelecida⁽²⁰⁾; de qualquer forma, estudos com animais que inalaram ar ou ingeriram alimentos contendo urânio, demonstraram que a quantidade de urânio nos ossos e em menor evidência nos tecidos moles, é diretamente proporcional ao nível de exposição ao urânio.

Embora pouca informação esteja disponível com relação ao urânio nos tecidos moles, mostra-se que a concentração total de urânio nos rins de um homem adulto é de aproximadamente 0,1 μg ou 0,004 μg por g dos tecidos de rins⁽²⁰⁾.

Existe importante competição entre o Ca^{2+} e o UO_2^{2+} nos rins, onde o Ca^{2+} é eficientemente reabsorvido; no intestino, o cálcio é ativamente absorvido na proporção que o metabolismo

necessita e no esqueleto onde o UO_2^{2+} é limitado à hidratação da superfície dos cristais minerais dos ossos⁽²⁰⁾.

3.1.2. INCORPORAÇÃO DO RÁDIO

Segundo Schlenker et al.⁽⁴³⁾, a assimilação natural de rádio pode ser imaginada como séries vitalícias de ingestões instantâneas da dieta. A retenção sob ingestão contínua é proporcional à integral de retenção efetiva para ingestão instantânea. Por analogia, a quantidade que se acumula em órgãos específicos é proporcional às integrais de retenção para esses órgãos. Devido ao rápido decréscimo na retenção do rádio com o tempo, após um pequeno período de exposição, visto nas Figuras 5, 6 e 7, eles estimam que os níveis naturais de rádio nos tecidos moles, alcancem um patamar dentro de poucos anos. Assim, em adultos, eles estimam que os valores relativos das integrais de retenção efetiva poderão ser determinados para órgãos pela medida das concentrações naturais de rádio em praticamente qualquer idade.

Schlenker et al.⁽⁴³⁾ recentemente ajustaram o modelo de retenção de alcalinos terrosos com base em dados sobre a concentração de ^{226}Ra em tecido mole de 17 indivíduos que receberam rádio por ingestão ou injeção e que foram monitorados em um intervalo de 5 dias a 53 anos após a transferência. Eles concluíram que o pico de retenção no tecido mole que era de 58% no corpo inteiro, 18 dias após uma simples ingestão, desceu rapidamente para

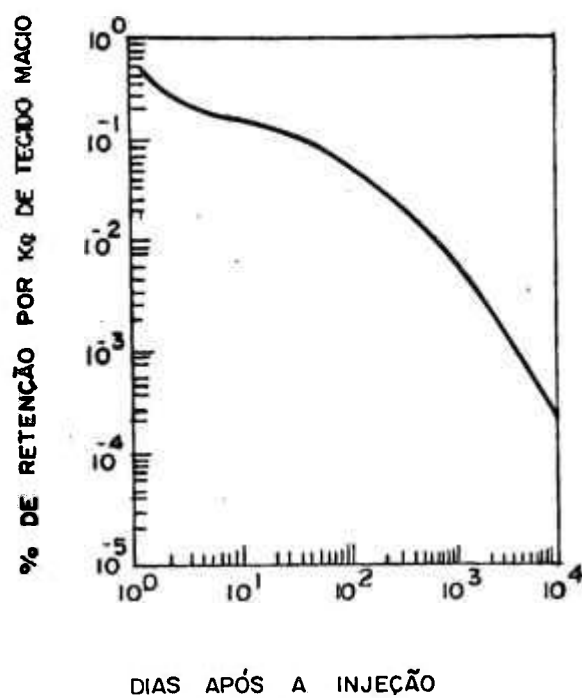


Figura 5. ^{226}Ra no tecido mole em função do tempo após a injeção (Indivíduos que receberam uma simples injeção intravenosa) ⁽⁴³⁾

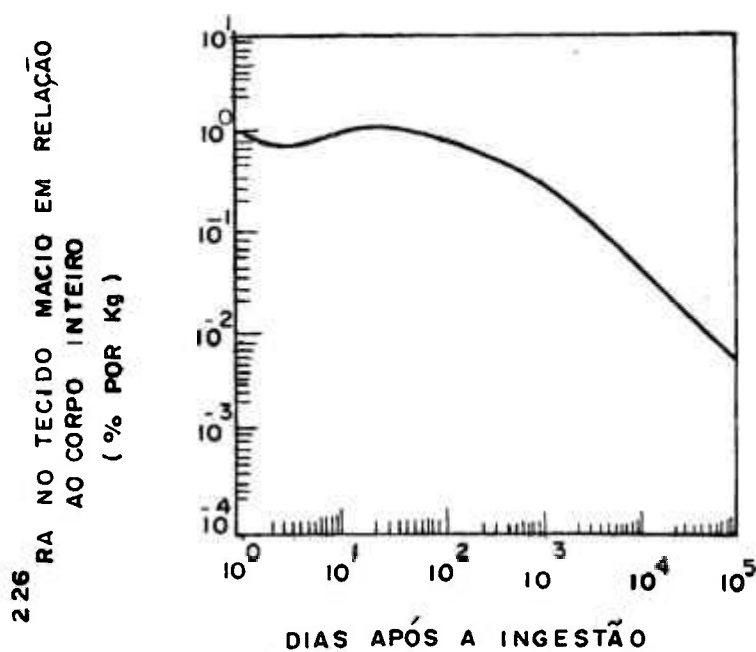


Figura 6. ^{226}Ra no tecido mole em função do tempo após a ingestão (Indivíduos que ingeriram uma atividade desconhecida) ⁽⁴³⁾

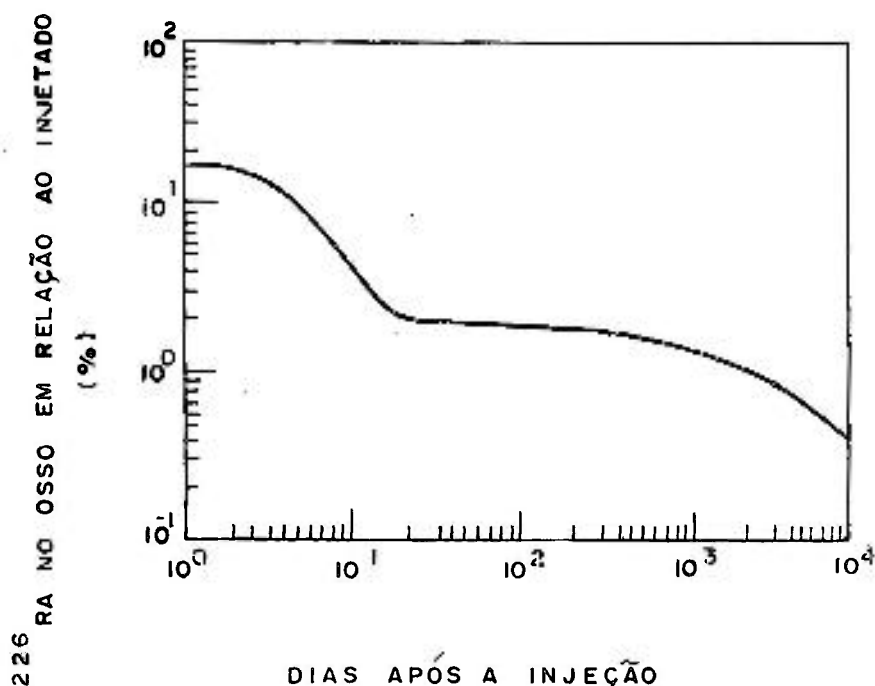


Figura 7. ^{226}Ra nos ossos em função do tempo após a injeção⁽⁴³⁾

33% em 100 dias e 6% em 1000 dias. Sob condições de ingestão crônica, 5,5% da concentração de rádio estavam nos tecidos moles, sendo este valor baseado nas medianas de órgãos específicos e tecidos⁽⁴³⁾.

O corpo metaboliza rádio de maneira similar ao cálcio. Se o rádio é introduzido na corrente sanguínea e finalmente fixado ao longo do osso, juntamente com o cálcio, pode causar câncer. O máximo teor de ^{226}Ra recomendado para o corpo é de 0,2 μCi ($7,4 \times 10^3$ Bq)⁽¹⁷⁾.

Norris et al.⁽⁴⁴⁾, em uma análise completa de dados

existentes até 1955, resumiram a função de retenção de corpo inteiro (R) para rádio de acordo com o tempo após uma simples injeção intravenosa. A curva em conjunto com a equação de retenção são encontradas na Figura 8⁽⁴⁴⁾.

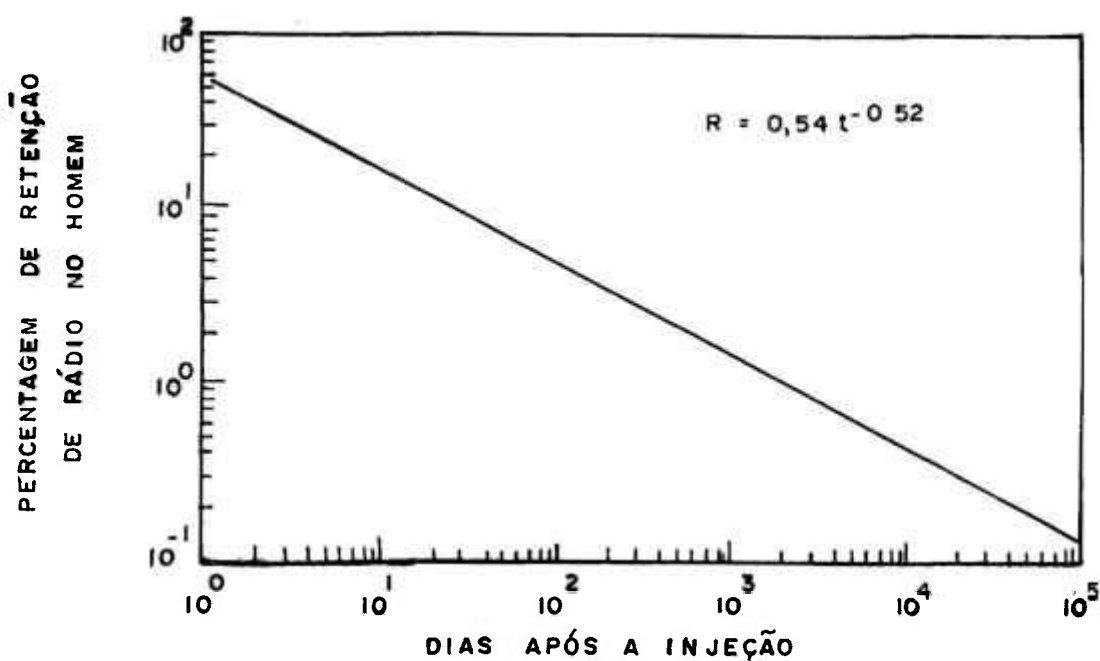


Figura 8. Retenção de ²²⁶Ra no corpo inteiro

3.2. DOSE

Para determinar a dose total no corpo inteiro ou em um determinado órgão, as contribuições de todos os radionuclídeos relevantes e vias de exposição devem ser somadas para os membros de um grupo homogêneo da população⁽⁴⁵⁾.

A exposição externa devida à radiação é provocada pela submersão na nuvem beta e gama. A exposição à radiação resultante da submersão na nuvem beta é diretamente proporcional à concentração de um determinado nuclídeo no ar no local em questão. Entretanto, no ar os raios beta têm um alcance de apenas poucos metros. Com relação à exposição causada por submersão na nuvem gama, a contribuição para a exposição dos raios gama emitidos é perceptível dentro de um raio de algumas centenas de metros.

A exposição interna devida à radiação é provocada pela inalação e ingestão. No caso da exposição por inalação, a dose depende da atividade dos radionuclídeos no ar do local, enquanto a exposição por ingestão depende da concentração dos radionuclídeos presentes nos alimentos e água potável⁽⁴⁵⁾.

A ingestão de alimentos contaminados é uma forma potencialmente importante de exposição interna, que deve ser considerada para avaliar a dose no homem devido aos radionuclídeos liberados no ambiente⁽⁷⁾. O transporte de radionuclídeos por meio da cadeia alimentar é normalmente avaliado com modelos projetados para situações de exposições onde as concentrações dos radionuclídeos nos produtos alimentares e a concentração média no ambiente são consideradas como estando em equilíbrio⁽⁷⁾.

A dose interna devida à ingestão depende da concentração do radionuclídeo no alimento e de sua meia-vida biológica. Para a

estimativa desta dose é necessário determinar a concentração dos radionuclídeos nos alimentos e água. Para o cálculo da dose interna é usual obter-se amostras da dieta total e conhecer-se a quantidade de alimentos ingeridos por dia. A ingestão pelo homem deve ser reconstruída dessas medidas usando-se um modelo que relacione a concentração média da ingestão via alimento e a dose. Em nosso caso tomaremos por base estudos do hábito alimentar da população da região em geral e do grupo residente na zona rural da área de estudo.

3.3. RISCO DEVIDO À INGESTÃO

O rádio é um elemento quimicamente similar ao cálcio e que se acumula principalmente no esqueleto. Até recentemente, os únicos casos de câncer em seres humanos atribuídos a ele estavam associados com tecidos dos ossos ou adjacências.

Tanto nos seres humanos quanto nos animais, a deposição dos isótopos do rádio induz a sarcoma nos ossos. O ^{226}Ra também induz a carcinoma de crânio, que acredita-se seja decorrente do gás ^{222}Rn e seus descendentes. Isto sugere que quando o ^{226}Ra decai para o ^{222}Rn dentro do corpo, a acumulação do ^{222}Rn e seus descendentes nas cavidades do crânio seja a causa do carcinoma. Para os isótopos ^{224}Ra e ^{228}Ra , os quais não produzem ^{222}Rn , o risco de carcinomas de crânio é desprezível quando comparado ao risco de sarcomas de osso⁽²⁷⁾.

Um excesso significativo de tumores no seio foi verificado entre mulheres pintoras de mostradores de relógio com substância à base de rádio, onde houve uma ingestão de 50 μCi ($1,85 \times 10^6$ Bq) ou mais daquele radionuclídeo. Um aumento de tumores também foi observado em outros tecidos moles, porém sua abundância é estatisticamente insignificante⁽⁴³⁾.

Mays et al.⁽²⁷⁾ sintetizaram uma experiência epidemiológica com emissores alfa no osso humano e concluíram que o risco da radiação induzir leucemia é insignificante em relação aos sarcomas de osso. Eles e outros pesquisadores⁽⁴⁶⁻⁴⁸⁾, observaram que entre 2940 pessoas, principalmente mulheres, que trabalharam diariamente com rádio antes de 1970, foram encontrados 63 casos de sarcomas de osso contra apenas 1 esperado naturalmente, 21 casos de carcinomas de crânio contra 1 esperado naturalmente e 10 casos de leucemia contra 9 esperados naturalmente. Assim, os casos de sarcomas de osso são muito maiores do que os de leucemia (o valor 1 pode não ser diferente de zero, do ponto de vista estatístico).

Segundo Mays et al.⁽²⁷⁾, o coeficiente de risco de vida devido à indução de leucemia por partículas alfa em seres humanos é muito mais baixo do que o obtido multiplicando o coeficiente de risco da ICRP 26, por um fator de qualidade de 20. Esse coeficiente de risco para partículas alfa é, segundo a ICRP, de 400 leucemias por 10^6 pessoas-rad (4×10^4 leucemias por 10^6 pessoas-Gy).

Spiers et al.⁽⁴⁷⁾ calcularam a dose de partículas alfa para a medula do osso em um subgrupo especial de 693 mulheres que trabalharam como pintoras de mostradores de relógios antes de 1930. A dose de partículas alfa na medula foi em média 25 rad (0,25 Gy). Admitindo uma dose média similar para o total medido e o subgrupo não medido de 1285 mulheres localizadas, que trabalharam no mesmo processo antes de 1930, o coeficiente de risco da ICRP previu 13 casos de leucemia induzidos pela radiação entre essas mulheres. O total previsto de casos de leucemia foi cerca de 18 (13 induzidos pela radiação mais 5 esperados naturalmente)⁽⁴⁷⁾. Entretanto, a previsão de 18 leucemias foi fortemente rejeitada devido à ocorrência de apenas quatro casos de leucemia entre essas 1285 mulheres. Porém, se o coeficiente de risco for dez vezes menor, o total previsto será de cerca de seis leucemias (uma induzida pela radiação mais cinco esperadas naturalmente) e estará razoavelmente de acordo com os quatro casos observados⁽²⁷⁾.

Enquanto que o risco de indução de câncer no tecido mole é dado como pequeno para ^{226}Ra depositado internamente, a probabilidade de risco de câncer induzido pelos isótopos do urânio é desconhecida. Porém, por analogia com o rádio, supõe-se que este risco não seja significativo⁽²⁷⁾.

Tracy et al.⁽¹²⁾, usando fatores de risco da literatura e uma relação de resposta linear de dose, estimaram a incidência anual de câncer de osso em uma localidade de Ontario-Canadá

resultante da ingestão de ^{226}Ra em produtos de hortas contaminadas por rejeitos de processamento de urânio. Os autores fizeram os cálculos como se todos os indivíduos tivessem recebido 68 mrem (0,68 mSv) (valor máximo da dose encontrada devido à ingestão de produtos das hortas) na superfície do osso durante toda vida. Se o risco por rem é considerado como sendo 5×10^{-6} (ICRP 30), então a incidência de câncer fatal de osso devido aos 68 mrem/ano para 10^4 pessoas será 0,0034 casos/ano.

A transferência diária necessária para manter a concentração de rádio constante no osso pode ser diferente para recém-nascidos, crianças, adolescentes e adultos. Resultados apresentados por Muth e Globel⁽⁴⁹⁾, sugerem possíveis picos de concentração de ^{226}Ra em crianças de cerca de 1 a 10 anos de idade, situando-se 20% acima do valor médio encontrado para adultos.

Stehney e Lucas⁽⁵⁰⁾ realizaram estudos de retenção de ^{226}Ra no corpo de prisioneiros que usaram água potável de um poço localizado nas dependências da prisão de "Stateville". A retenção de ^{226}Ra no corpo desses indivíduos em função do tempo de permanência é mostrado na Figura 9⁽⁵⁰⁾. Por intermédio desta curva os autores definiram o fator de transferência (f_1) do ^{226}Ra para o sangue que foi de 0,21 (21%). Os pontos da curva foram definidos para um decaimento fecal de 1,5 dias, admitindo uma completa emissão de ^{222}Rn das fezes. Os dados refletem o aumento de rádio no corpo em função do tempo, devido à ingestão de níveis elevados de

^{226}Ra na água da prisão.

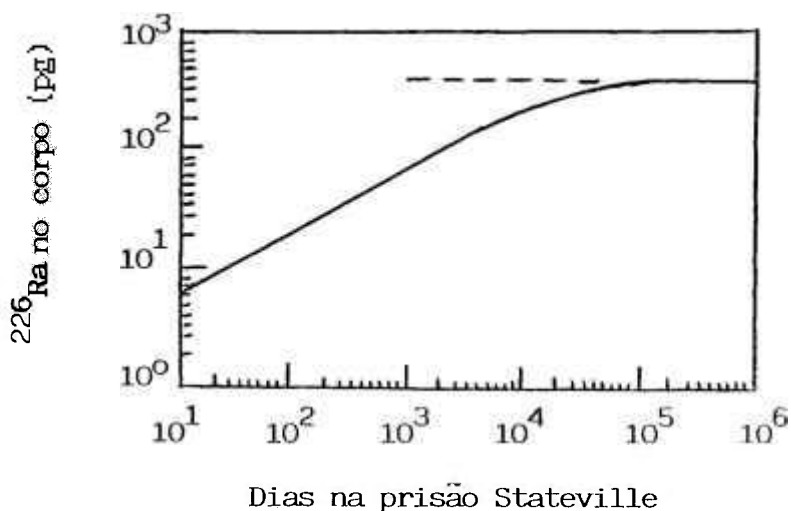


Figura 9. Assimilação de ^{226}Ra no homem devido à ingestão de água em função do tempo

Admitindo uma expectativa de vida de 75 anos, somente a transferência de rádio durante os primeiros 65 anos é considerada efetiva para a indução de carcinomas de crânio, admitindo-se um período mínimo latente de 10 anos para esses carcinomas⁽⁴⁸⁾.

Mays et al.⁽²⁷⁾ calcularam o risco de vida acumulado para 1 milhão de pessoas cada uma tendo assimilado o equivalente a $1 \mu\text{Ci}$ de ^{226}Ra /dia no sangue, durante toda a vida (75 anos). Os autores estimaram em cerca de 12 os casos de carcinoma de crânio previstos, e em cerca de 9 os casos de sarcomas de ossos previstos. Para uma taxa de incidência natural em torno de $0,5 \times 10^{-5}$ por ano em 1 milhão

de pessoas surgirão cerca de 375 casos de carcinomas de crânio, durante suas vidas. Para uma taxa de incidência natural de 1×10^{-5} por ano, ocorrerão cerca de 750 sarcomas de osso nesta mesma população, admitindo uma expectativa de vida de 75 anos⁽²⁷⁾.

O teor de urânio em equilíbrio no esqueleto encontra-se entre 1 e 35 vezes a ingestão diária, sendo 11 a melhor estimativa encontrada⁽²⁰⁾. O risco acumulado durante uma vida, devido à ingestão de 5 pCi de U por dia é calculado em cerca de 1,5 casos de sarcomas de osso em 1 milhão de pessoas expostas.

Capítulo IV

MATERIAIS E MÉTODOS

4.1. CARACTERÍSTICAS DO LOCAL

Sabe-se que rochas fosfáticas de origem marinha do mundo contêm pequenas quantidades de urânio e que o conteúdo deste elemento, em geral, varia diretamente com o de fosfato. No âmbito da bacia sedimentar costeira, que se estende de Pernambuco à Paraíba, determinações realizadas em amostras de fosforita acusaram a presença de urânio. Conseqüentemente ao se caracterizar as zonas mineralizadas em fósforo, estar-se-á automaticamente caracterizando as zonas onde ocorrem urânio⁽³⁾. A Figura 10 mostra a área de ocorrência de mineralização urano-fosfática, no âmbito da bacia sedimentar PE/PB⁽³⁾.

O fosfato deve ter sido originado de restos orgânicos fósseis, acumulados na zona basal, com um longo período de tempo de sedimentação. Existe uma variação de espessura e da composição litológica dessas camadas basais com relação ao conteúdo de calcário e argila⁽¹⁾.

O urânio é constituinte traço nos minérios de fosfato, particularmente na apatita. De fórmula química aparentemente

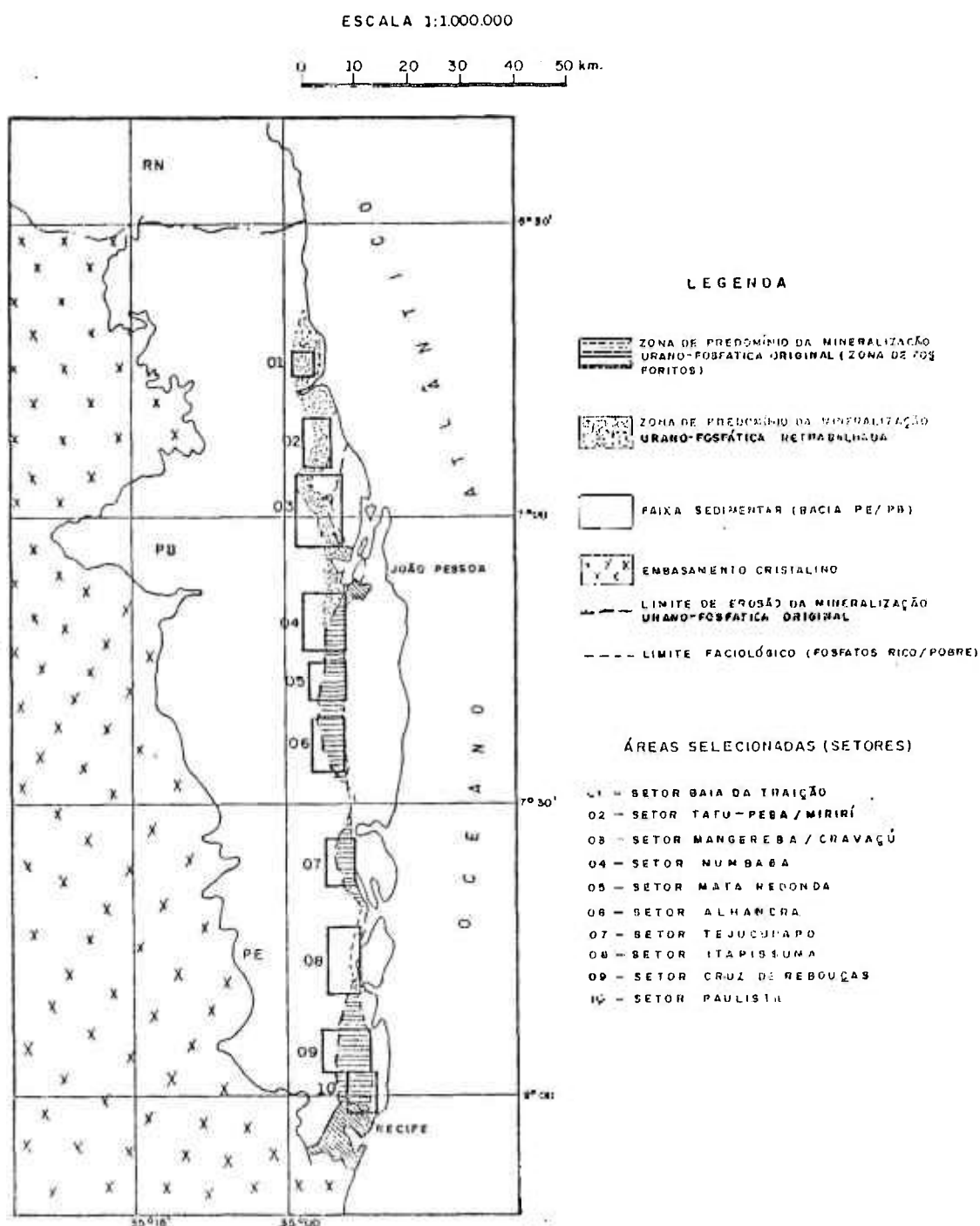


Figura 10. Área de ocorrência de mineralização urano-fosfática no âmbito da bacia sedimentar PE/PB

simples, $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH}, \text{Cl}, \text{F})$, mas de estrutura cristalina complexa, a apatita favorece substituições isomórficas do PO_4 pelos arseniados, silicatos, sulfatos, carbonatos e vanadatos⁽¹⁾. Essas substituições aniônicas do fosfato são compensadas eletrostaticamente pelos cátions de Mg, Mn, Sr, Pr, Au, U e Th.

A estrutura reticular é muito estável necessitando de um drástico tratamento químico ou térmico para substituí-la. Acredita-se que o urânio existente no fosfato seja proveniente da percolação de água do mar através da rocha. O teor varia em função do tempo em que os grãos de fosfato ficaram expostos à solução percoladora, com o conteúdo de urânio nessas soluções e com a permeabilidade dos leitos fosfáticos⁽¹⁾.

Trabalhos realizados por Saad⁽⁴⁾ e CNEN/DNPM⁽³⁾, na região urano-fosfática pernambucana, mostraram que a camada de maior concentração de urânio encontra-se a uma profundidade média de 6 metros, apresentando uma concentração média de 150 a 200 ppm de U_3O_8 , estando entre as mais altas já encontradas neste tipo de minério⁽¹⁾. A região apresenta várias formações sobrepostas à camada mineralizada, sendo que em alguns pontos estas camadas sofreram erosão deixando o fosfato praticamente exposto. Na Figura 11⁽⁴⁾ pode-se ter uma visão da coluna estratigráfica da faixa sedimentar costeira Pernambuco-Paraíba, o posicionamento do fosfato na base da formação Gramame sobrepondo a formação Itamaracá e a radioatividade média em c.p.s. para cada formação. Tomando-se por base essa

COLUNA ESTRATIGRÁFICA		FAIXA SEDIMENTAR COSTEIRA PE/PB	
Formação	Membro	Ambiente Gerador	Radioativida- de em c.p.s.
Várzea Praias Dunas	Arenoso Argiloso	Depósitos de várzeas, terraços fluviais, dunas e praias	50-60
Barreiras	Argiloso e Arenoso	-	70-80
Maria Farinha	Calcífero	Deposição marinha em água de salinidade normal. Calcários de origem química e biológica	-
Gramame	Calcífero	Plataforma de relevo plano, recoberto por mar transgressivo de águas quentes	120-140
	Fosfático	Profundidades produ- zidas e condições ecológicas favorável a vida animal	1.000
Itamaracá	Itapissuma	Depósito continental de água doce ou salobra	50-120
	Congo	Plataforma continental (marinho)	-
Beberibe		Continental	50

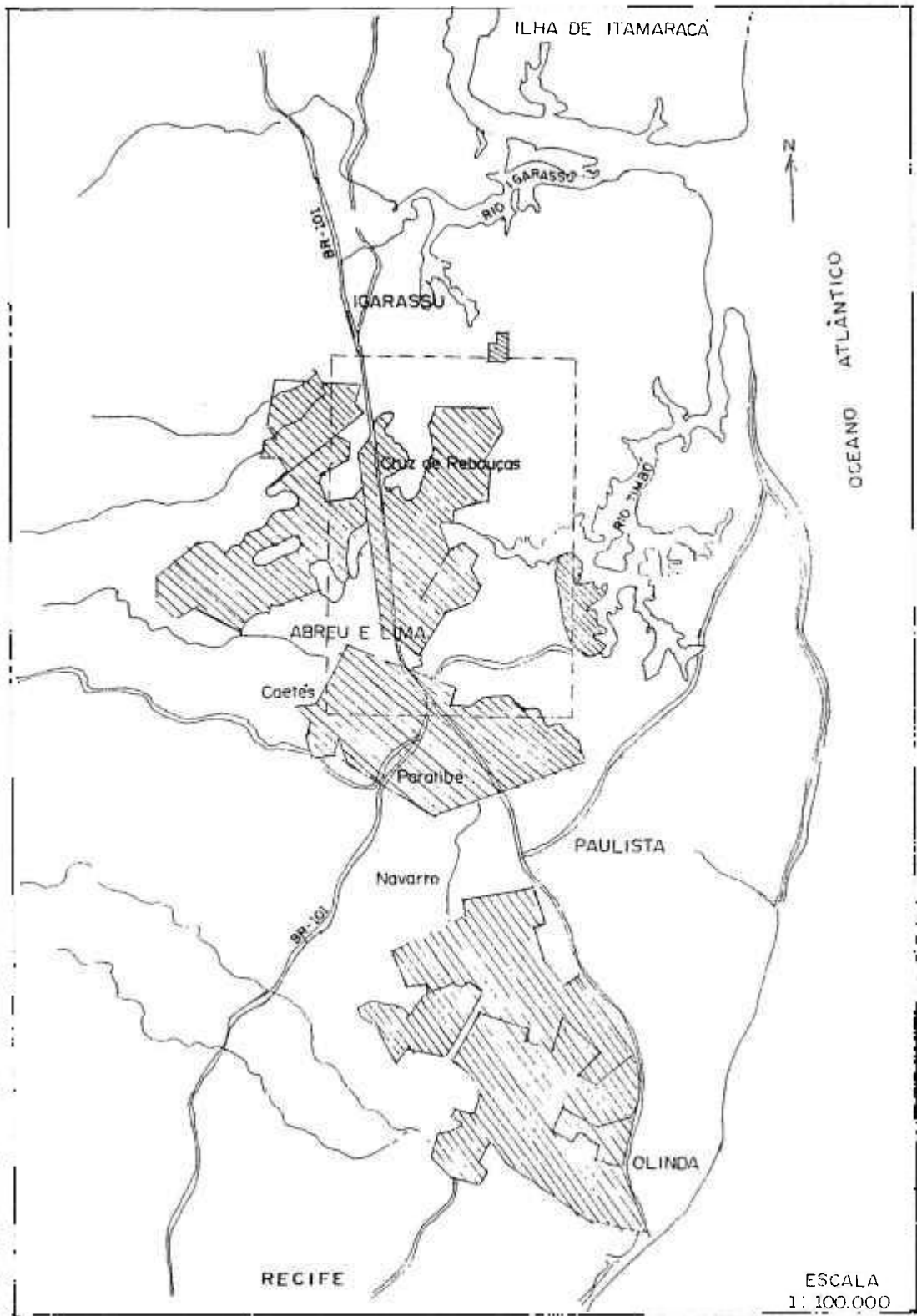
Figura 11. Coluna estratigráfica da faixa sedimentar costeira PE/PB⁽⁴⁾

figura, pode-se verificar que a extração deste fosfato certamente provocará um impacto na superfície, porque neste processo existem perdas o que aumentará consideravelmente a radiação de fundo da superfície do solo. Os afloramentos naturais deste fosfato são raros e a espessura da jazida varia desde decímetros até quase quatro metros⁽¹⁾.

A região onde está localizada a jazida urano-fosfática é muito extensa e densamente povoada, principalmente na parte da costa pernambucana. Devido à sua grande extensão, fez-se necessário a delimitação de uma determinada área de forma que fosse possível a realização dos trabalhos. Selecionou-se uma área de estudo com 40 km², que apresenta cotas variando de zero a 80 metros e é delimitada ao norte pela cidade de Igarassu, ao sul pela cidade de Paulista, a leste pelo oceano Atlântico e oeste pelo loteamento Arco-Iris no município de Abreu e Lima. O mapa da Figura 12 mostra a área delimitada. Nesta área estão localizadas algumas partes dos municípios de Paulista, Abreu e Lima, Cruz de Rebouças e Igarassu.

Para estabelecer os pontos de coleta de amostras na região, vários locais de interesse foram visitados no sentido de levantar as características dos mesmos.

Além disso, nesta área foram encontradas várias indústrias. Em locais mais afastados de centros urbanos, foram encontrados vários sítios e chácaras, nos quais são cultivados



—— autorização de lavra - - - - - área para estudo

Figura 12. Área de ocorrência de fosfato comercial e a área delimitada para estudo

gêneros alimentícios tais como: cereais, leguminosas, frutas, tubérculos e raízes, existindo, também, algumas criações de gado leiteiro.

4.2. CRITÉRIO DE SELEÇÃO DE AMOSTRAS

Para selecionar os tipos de amostras a serem analisadas, fez-se um levantamento das culturas existentes na região e em pesquisa entre os agricultores, identificaram-se os tipos de alimentos que fazem parte da dieta da população local. Verificou-se que, em todos os casos, uma parte da produção é reservada para consumo da família e que o excedente é vendido, existindo, entretanto, algumas plantações voltadas para fins exclusivamente comerciais. Como a região é um pouco acidentada, a grande maioria dos cultivos estão localizados em pontos baixos (várzeas) acompanhando o percurso dos rios.

As principais culturas da região são:

- a. cereais e leguminosas : milho (Zea mays hinm) e feijão (Phaseolus vulgares hinm);
- b. tubérculo e raízes : batata-doce (Ipoemoea batatão Poir), macaxeira ou mandioca (Manihot dulcis Pax), inhame (Dioscorea sp) e cará (Dioscorea sp);
- c. frutas : coco (Cocos nucifera Linm), jaca (Artocarpus heterophyllus Lam), banana (Musa sapientum Linm), cajú (Anacardium occidentale linm), manga (Mangifera indica Linm), goiaba

(Pisidium guajava Linn), laranja (Citrus aurantium Linn e sinensis Osbeck) e mamão (Carica papaya Linn).

Selecionaram-se os alimentos que são de maior produção e uso diário, desconsiderando, neste caso, aqueles cuja influência é restrita apenas a uma estação do ano, como é o caso da maioria das frutas. Assim as amostras selecionadas foram: milho, feijão, macaxeira (mandioca), batata-doce, inhame, cajú, banana e manga.

4.3. PROCEDIMENTO DE COLETA E TRATAMENTO DAS AMOSTRAS

No mapa da Figura 13, pode-se ter uma visão geral de todos os pontos de coleta. As amostras coletadas (cereais, leguminosas, frutas, tubérculos e raízes), juntamente com os solos associados, foram procedentes do sítio Jaguaribe (S-05,09 e 13) às margens do rio Timbó, pertencente aos municípios de Paulista e Abreu e Lima, dos sítios Inhamã (S-15), Gugacerí (S-03), São José (S-11), Carcará (S-01), Forno da cal (S-10), Travira (S-04) e da rua Estrada Velha (S-06,07 e 14), da Granja Santo Antônio (S-08), das Fazendas Tupy (S-22) e Santa Cruz (S-24), Estrada da mina (S-16) e região da mina (S-04,19,20,23 e 28).

A frequência com que as amostras de alimentos são recolhidas, depende da época em que os mesmos são cultivados. Milho e feijão normalmente são colhidos nos meses de fevereiro e março; enquanto que o início da colheita do cajú é no mes de dezembro e a

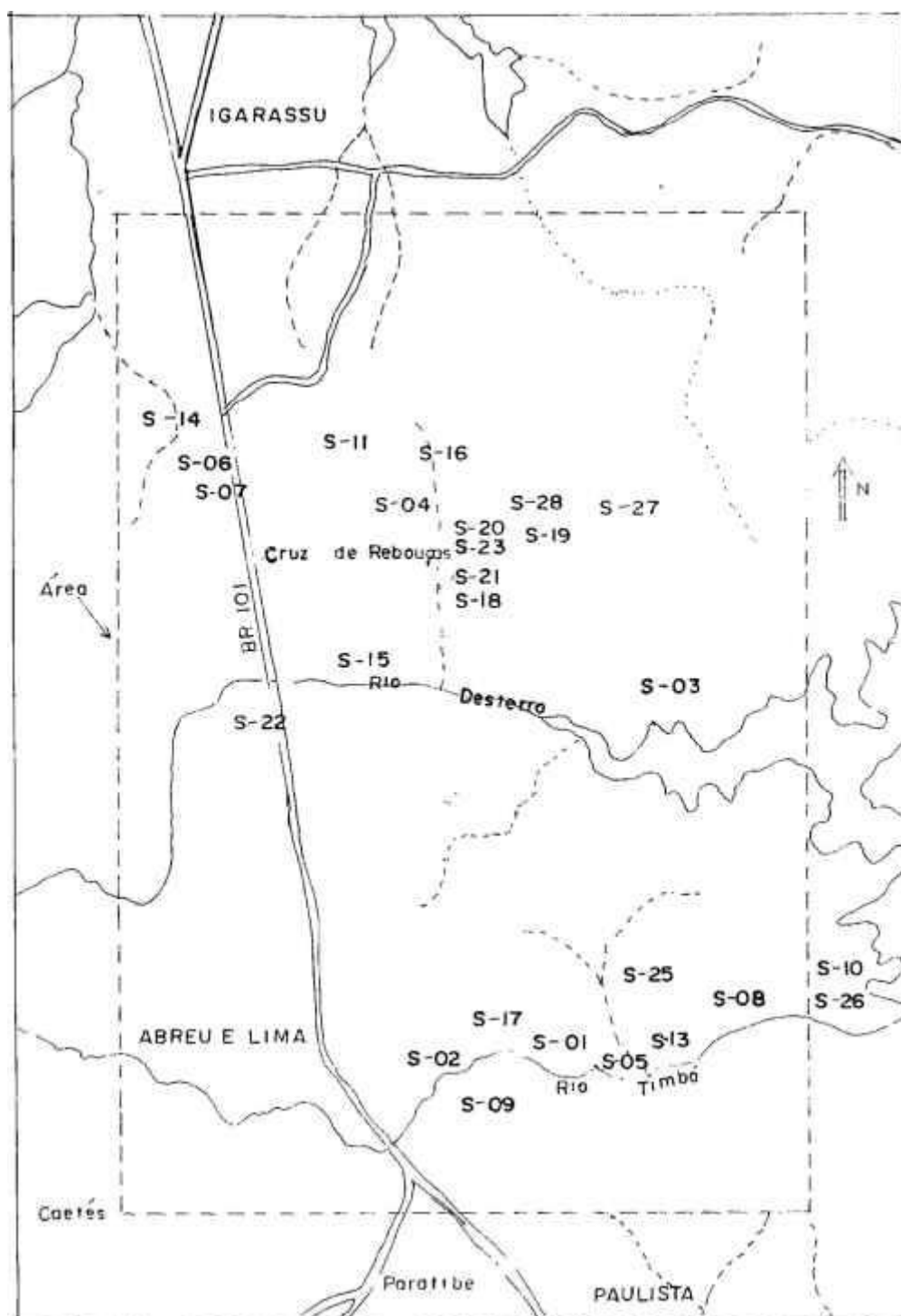


Figura 13. Visão geral dos pontos de coleta na área delimitada

manga apresenta dois períodos de colheita (dezembro e junho). Por outro lado, macaxeira (mandioca), batata-doce e inhame geralmente são colhidos no início do mês de julho ou agosto de acordo com o início da estação chuvosa.

Cereais, leguminosas, frutas, tubérculos e raízes foram limpos como se fossem usados para o consumo humano, pesados, divididos em partes pequenas, secos em uma placa de aquecimento a 70°C para extração do excesso de umidade e colocados em uma estufa a uma temperatura de 80°C por 24 horas. As amostras eram cobertas com folhas de papel alumínio para evitar contaminação devida à queda de pó das paredes dos fornos. Em seguida foram levadas ao forno e calcinadas a uma temperatura de 500°C para destruir a fração orgânica, tomando-se o cuidado para que não ocorresse a combustão da amostra. Para tanto, a temperatura foi aumentada lentamente de modo que atingisse 500°C após cerca de 48 horas, sendo mantida esta temperatura por mais 48 horas. Em seguida, tomaram-se 10 gramas de cinzas que foram dissolvidas com ácido nítrico concentrado^(51,52). A solução foi usada para determinação do ²²⁶Ra. Para determinação do urânio tomaram-se 2 g de cinzas e dissolveu-se em ácido nítrico-perclórico-fluorídrico⁽⁵²⁾.

As amostras de solo foram coletadas com trado manual em diferentes profundidades, de forma a verificar uma possível variação nas concentrações dos radionuclídeos de interesse e observar variações nos diferentes pontos de coletas. A profundidade

total de amostragem foi de 120 cm, dividida em três segmentos que variaram de 0 a 40 cm (A), 41 a 80 cm (B) e de 81 a 120 cm (C). Estas amostras foram secas ao ar livre por cerca de 72 horas, pesadas e peneiradas em peneiras de 2 mm. A fração de solo fino que passou pela peneira e a fração grosseira que ficou retida foram pesadas a fim de determinar a percentagem de finos daquele determinado solo. A quantidade máxima de material que ficou retido em todos os ensaios foi inferior a 0,5%. A fração passante foi quarteada e uma parte usada para determinação da quantidade de rádio trocável. Enquanto que a outra foi reduzida a uma granulometria inferior a 0,297 mm e usada para determinação de urânio e rádio totais por espectrometria gama.

4.4. ANÁLISE DE URÂNIO E ^{226}Ra NOS SOLOS E ALIMENTOS

A determinação de urânio nas amostras de plantas e solos foi efetuada pelo método fluorimétrico e por espectrometria gama. A escolha destes métodos de análise de urânio é justificada tendo em vista que:

- a) as amostras de alimentos, por apresentarem concentrações baixas de urânio, necessitam de um método bastante sensível. Por isso foi usado o método fluorimétrico disponível nos Laboratórios do Departamento de Energia Nuclear da UFPE onde foi realizado o trabalho experimental;
- b) as amostras de solo, por apresentarem concentrações que possibilitam a detecção por espectrometria gama, foram analisadas

por um detector de germânio hiperpuro, porém, a fração trocável foi determinada por fluorimetria. Neste caso também, as análises foram realizadas nos mesmos laboratórios.

A determinação de ^{226}Ra nas amostras de produtos agrícolas e solo foi realizada pela técnica de emissão de ^{222}Rn e por espectrometria gama. A escolha desses métodos para análise de ^{226}Ra é justificada tendo em vista que:

- a) as amostras de alimentos apresentam concentrações baixas de ^{226}Ra , portanto, o método indicado para esse tipo de análise é a técnica de emissão de ^{222}Rn ;
- b) devido à concentração de ^{226}Ra nas amostras de solo ser maior foi possível a determinação da quantidade total por espectrometria gama, enquanto o rádio trocável foi determinado pela técnica de emissão.

4.4.1. FLUORIMETRIA

A técnica de fluorimetria consiste na extração do urânio através de um extrator orgânico, seguida de sua fusão em pastilhas de compostos químicos, e da leitura da intensidade de fluorescência do urânio em um fluorímetro, após o esfriamento das pastilhas. A intensidade da fluorescência é proporcional à concentração de urânio presente nas amostras. Embora a utilização desta técnica necessite de um controle cuidadoso, as operações envolvidas não são complexas. A fusão de urânio em pastilha é geralmente efetuada em

um composto de LiF e NaF ou em carbonato. Determinações fluorimétricas de urânio efetuadas por Price⁽⁵³⁾, usando fusão em NaF e LiF, mostraram que o limite de detecção é em torno de 10^{-10} g de urânio por 300 mg de NaF. A precisão do método foi inferior a 10%. Thacher et al.⁽⁵⁴⁾, utilizando uma mistura de 9% de NaF, 45,5% de Na_2CO_3 e 45,5% K_2CO_3 , determinaram a concentração de urânio em águas naturais por meio de fluorimetria. Segundo os autores, o método é suficientemente sensível para permitir uma determinação direta com resíduo sólido, usando apenas 10 ml de água. O limite de detecção para este caso foi de 10 ppb de U.

A utilização de uma mistura de 2% de fluoreto de lítio e 98% de fluoreto de sódio fornece melhores resultados com relação à sensibilidade e precisão que os outros métodos⁽⁵⁵⁾. O coeficiente de variação do método empregando essa nova mistura é de 0,7%, conforme determinado por Centanni et al.⁽⁵⁵⁾. Esta composição melhora a precisão em torno de 6 vezes em relação ao uso de pastilhas de NaF puro.

Centanni et al.⁽⁵⁵⁾ mostraram que a composição das pastilhas contendo de 1% a 3% de fluoreto de lítio produz uma excelente resposta. Quando as pastilhas contêm mais do que 3% de fluoreto de lítio, a fluorescência por unidade de peso de urânio é inferior, como pode ser visto na Figura 14. A Figura 15 ilustra claramente a reprodutibilidade obtida. Esta figura foi preparada a partir de dados fluorimétricos obtidos com 500 pastilhas fundidas,

cada uma contendo 0,1 μg de U_3O_8 . Destas pastilhas, 250 foram preparadas a partir de fluoreto de sódio puro e 250 foram preparadas da mistura $\text{LiF}/\text{NaF}^{(55)}$.

No presente trabalho, para realização das medidas por fluorimetria, foi necessário inicialmente dissolver as cinzas. Para tanto, tomaram-se dois gramas de cinzas que foram dissolvidas com ácido nítrico-perclórico e ácido fluorídrico^(51,52) e então diluídas para 50 ml com água destilada. Tomou-se o cuidado de usar reagentes de grau analítico com uma quantidade desprezível de urânio e outras impurezas fluorescentes. Tomaram-se alíquotas de 20 ml da solução das amostras e dos padrões colocando-as em tubos de extração. Para que a extração fosse procedida, adicionaram-se 1 ml de uma solução saturada de nitrato de alumínio e 1 ml de "Tri-n-Octyl-Phosphine oxide" (TOPO). Os tubos foram agitados durante 10 minutos e colocados em repouso durante uma hora. Neste intervalo de tempo, preparam-se pastilhas de uma mistura contendo 2% de fluoreto de lítio e 98% de fluoreto de sódio, pesando aproximadamente 300 mg, em cadinhos de platina previamente polidos. Tomou-se 100 μl da fase orgânica e transferiu-se esta alíquota para pastilhas de LiF/NaF . Estas pastilhas foram secadas em uma estufa a uma temperatura de 130°C por 30 minutos e fundidas em um forno a uma temperatura de 1000°C durante 6 minutos. Colocou-se também, no forno, um cadinho de platina vazio para zerar o início da escala e outro cadinho contendo LiF/NaF e 100 μl de uma solução de 1 ppm de urânio para definir o final de escala. Após a fusão, os cadinhos foram

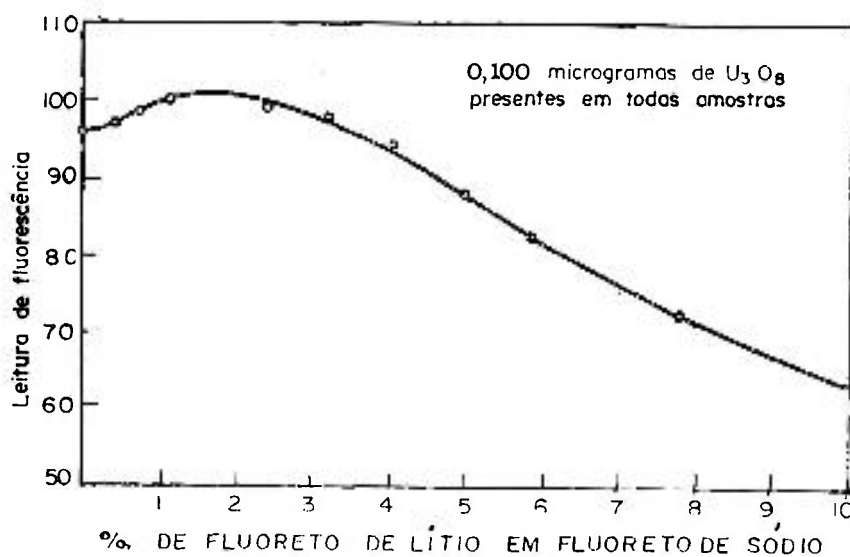


Figura 14. Efeito do LiF na fluorescência do urânio em $NaF^{(55)}$

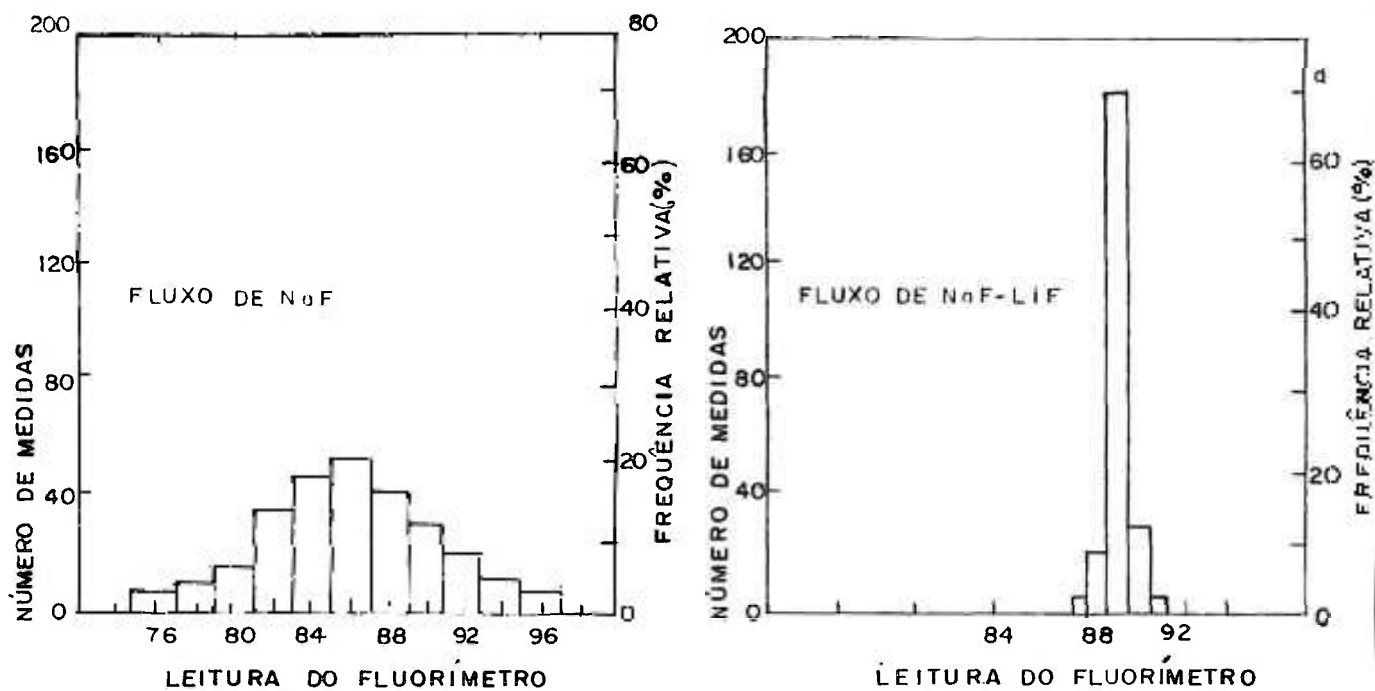


Figura 15. Comparação da reprodutibilidade obtida com 100% de NaF com relação a 2% de LiF misturado com 98% de $NaF^{(55)}$

transferidos para uma estufa a 150°C, onde permaneceram até atingir esta temperatura. Em seguida o material foi retirado da estufa e colocado em um dessecador por 20 minutos. A leitura foi feita decorrido no mínimo 1 hora após o término da fusão.

Para verificar possível absorção de luz pela matriz das amostras de cinzas no momento da leitura, procedeu-se da seguinte forma: tomaram-se quatro bequeres e colocaram-se dois gramas de cinzas de um mesmo tipo de amostra em cada um, adicionando-se em dois deles 1 ml de uma solução contendo 1 ppm de urânio. As quatro amostras foram dissolvidas como descrito anteriormente. Para análise por fluorimetria, diluiu-se, também, 1 ml de solução de 1 ppm de urânio em água deionizada até um volume de 50 ml que foi utilizado para comparação com as quatro amostras anteriores. Desta forma foi possível avaliar interferências da matriz na análise de cinzas.

Para determinação do urânio trocável, tomaram-se 10 g de solo com granulometria passante na peneira de 2 mm, adicionando 100 ml de acetato de amônio pH 7, agitou-se durante a noite (16 horas), centrifugou-se e desprezou-se a fase sólida⁽⁶⁸⁾. A solução foi filtrada em papel quantitativo e em seguida em papel millipore e analisada por fluorimetria como descrito anteriormente.

4.4.2. ESPECTROMETRIA GAMA

A determinação por espectrometria gama é um método de boa precisão, prático, não-destrutivo e sua rapidez está intimamente ligada às concentrações dos radionuclídeos de interesse.

Geralmente o urânio no solo não apresenta todos os seus produtos de decaimento em equilíbrio radioativo. É de interesse conhecer o desequilíbrio de um determinado minério, para interpretação realística de dados radiométricos. Especial importância deve ser dada ao desequilíbrio entre o ^{226}Ra e ^{238}U .

A medida direta do ^{235}U , por meio do fotopico de 186 keV, requer informações sobre as condições de equilíbrio radioativo dos produtos de decaimento do ^{238}U , pelo menos até o ^{226}Ra ⁽⁵⁶⁾. O ^{234}Th da cadeia de decaimento do ^{238}U , foi utilizado em diversos trabalhos^(2,57-61) para medidas indiretas de urânio elementar.

Para controlar o desequilíbrio radioativo, Porritt e Bone⁽⁶²⁾ determinaram a intensidade do ^{235}U no fotopico de 186 keV no espectro gama de um determinado minério de urânio, a qual foi obtida por simples subtração da contribuição do ^{226}Ra . Esta contribuição foi calculada associando as contagens gama do ^{226}Ra aos fotopicos do ^{214}Pb em 242, 295 ou 352 keV de uma amostra de ^{226}Ra livre de urânio, em equilíbrio radioativo com seus descendentes e

sob idênticas condições de medidas.

A fração gama do ^{235}U , no fotopico complexo de 186 kev, foi determinada por Smith et al.⁽⁶³⁾ diretamente da taxa de decaimento e das concentrações de ^{235}U e ^{238}U em uma amostra de urânio. Partindo de dados nucleares, calcularam que as emissões gama do ^{235}U e do ^{226}Ra formam o fotopico de 186 kev com 41,5% da intensidade devida a transição gama de 185,7 kev do ^{235}U e 58,5% da transição gama de 186,2 kev do ^{226}Ra .

Um dos trabalhos mais recentes sobre análises radiométricas de urânio por espectrometria gama foi realizado por Paic' e Chouak⁽⁶⁴⁾. Eles determinaram a taxa absoluta de $^{226}\text{Ra}/^{235}\text{U}$ usando um detector de alta resolução. A intensidade gama do ^{235}U neste fotopico corresponde a um fator de 0,449, obtido experimentalmente. Seguindo a mesma linha de trabalho, Zaman e Chitumb⁽²⁸⁾ usaram o fator 0,449⁽⁶⁴⁾ para determinar a relação entre o ^{226}Ra e o ^{235}U em uma amostra desconhecida, usando um padrão.

Vários autores, entre eles, Kin e Burnett⁽⁵⁶⁾; Couak e Vuister⁽⁵⁷⁾ e C. Lee e K. Lee⁽⁵⁸⁾, fizeram uso dos fotopicos de 63 e 93 kev do ^{234}Th pois este radionuclídeo necessita de um tempo relativamente curto para reestabelecer o equilíbrio com o ^{238}U . Constataram que o fotopico de 63 kev apresenta menos interferência do que o de 93 kev.

No presente trabalho, a determinação de urânio no solo foi obtida usando os fotopicos de 93 e 186 KeV, enquanto que o ^{226}Ra foi determinado por meio dos fotopicos de 352 kev do ^{214}Pb e 609 kev do ^{214}Bi . Para isto utilizou-se um detector HP(Ge), acoplado a um analisador de pulsos de 4096 canais. O urânio foi quantificado utilizando padrões de referência fornecidos pelo IRD-CNEN/RJ que foram homogeneizados em solo de característica semelhante aos da região de estudo.

4.4.3. TÉCNICA DE EMANAÇÃO

Os diversos métodos de análise de ^{226}Ra em água, descritos por Takeishi⁽⁶⁵⁾, são: co-precipitação e medida direta da atividade alfa; co-precipitação do rádio, redissolução do rádio e medida da atividade alfa por cintilação líquida; emanação do radônio para garrafa de Lucas e medida da atividade alfa; emanação do radônio para câmara de ionização e medida da atividade alfa; emanação do radônio para carvão ativado, reemanação para garrafa de Lucas e medida da atividade alfa; e, finalmente, emanação do radônio para filtro duplo e medida da atividade alfa.

Neste trabalho, adotou-se a técnica de emanação de ^{222}Rn apresentada por Rushing et al.⁽⁶⁶⁾, por ser atualmente a mais sensível para determinação de ^{226}Ra . Esta técnica faz uso da célula de Lucas.

Para análise de cinzas de plantas, tomaram-se 10 g de cinzas, adicionaram-se 20 mg de carreador de bário e ácido nítrico concentrado evaporando-se até quase secura. Calcinou-se a 500°C por 30 minutos, retomando a amostra com 50 mL de ácido nítrico concentrado e levando-se à ebulição. A solução foi filtrada e o volume foi completado para 1 litro, aquecendo-se em seguida até a ebulição^(51,52). Adicionaram-se 50 mL de ácido sulfúrico 3 M lentamente e com agitação. A solução foi mantida sob agitação por 7 minutos e deixada em repouso durante a noite. Em seguida foi descartado o sobrenadante e o precipitado transferido para um tubo de centrífuga. Centrifugou-se durante 5 minutos a 5000 rpm e descartou-se o sobrenadante, adicionaram-se 20 ml de solução de EDTA, 2 ml de NH₄OH e aqueceu-se em banho-maria até o precipitado ser totalmente dissolvido. O volume foi reduzido até obter aproximadamente 15 ml da solução, que foi transferida para um borbulhador, em seguida fez-se a limpeza da solução, passando ar comprimido envelhecido através desta por cerca de 20 minutos, anotando o tempo do final da limpeza. Tem-se, desta forma, o instante do início do crescimento do ²²²Rn. Após determinado tempo, o ²²²Rn produzido pelo decaimento do ²²⁶Ra foi extraído do borbulhador e armazenado em uma célula de Lucas para que o ²²²Rn entrasse em equilíbrio com os seus descendentes. Após determinado tempo, a atividade alfa total^(51,54,66,67) foi determinada com auxílio do seguinte sistema: fotomultiplicadora, pré-amplificador, amplificador, discriminador e contador. Todo sistema de emanção pode ser visto na Figura 16.

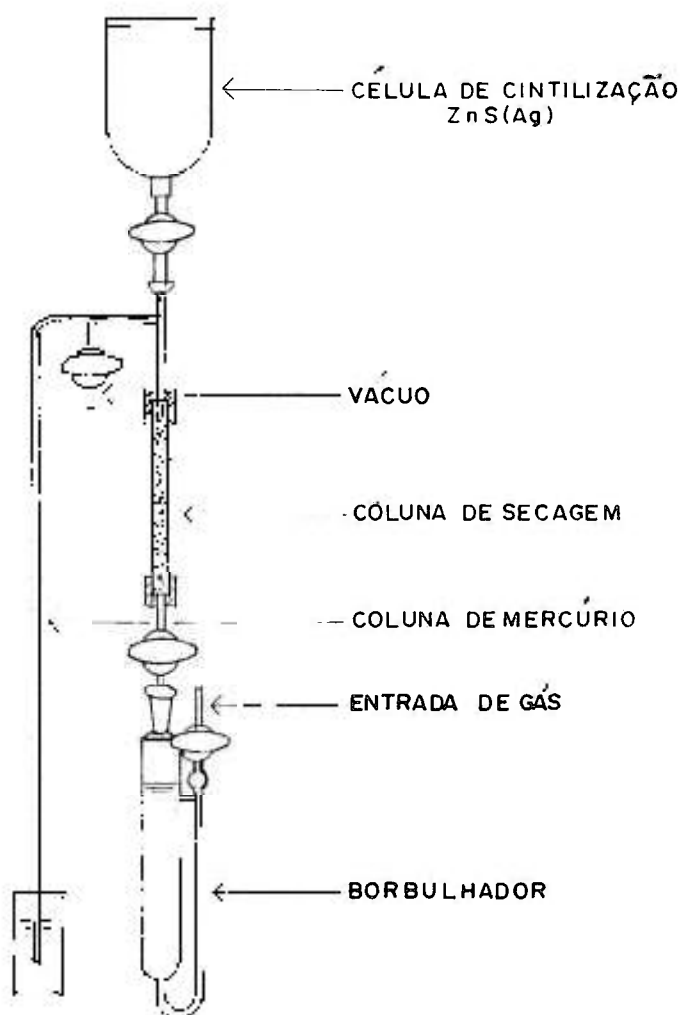


Figura 16. Sistema de emanção de ^{222}Rn

A atividade da amostra foi calculada por intermédio da seguinte equação^(52,66):

$$A = \frac{Rn}{E \times V \times Rq} \times \frac{1}{1 - e^{-\lambda t_1}} \times \frac{1}{e^{-\lambda t_2}} \times \frac{\lambda t_3}{1 - e^{-\lambda t_3}} \quad (1)$$

onde:

Rn é a taxa de contagem líquida em cpm,

Rq é o rendimento químico,

V é o volume da amostra em litros,

E é a constante de calibração em cpm/mBq,

t₁ é o tempo decorrido, em dias, entre a primeira e a segunda limpeza,

λ é a constante de decaimento do ²²²Rn,

t₂ é o intervalo de tempo em horas, entre a segunda emanção e a contagem,

t₃ é o tempo de contagem em minutos.

O valor de E foi calculado usando a equação⁽⁵²⁾,

$$E = \frac{C - B}{A(1 - e^{-\lambda t_1}) e^{-\lambda t_2}} \quad (2)$$

onde:

B é a radiação de fundo em cpm,

C é a taxa de contagem total em cpm,

A é a atividade do ²²⁶Ra no borbulhador, em mBq;

t₁ é o tempo de crescimento do radônio em horas;

t₂ é o tempo de decaimento do radônio, em horas, transcorrido entre a emanção e a contagem;

λ é a constante de decaimento do ²²²Rn.

O solo com granulometria inferior a 2 mm foi quarteado,

sendo uma parte usada para determinação da quantidade de rádio trocável usando o método de Rushing e a outra foi reduzida a uma granulometria inferior a 0,297 mm e usada para determinação do rádio total usando espectrometria gama.

Apesar da existência de vários reagentes usados na extração de cátions trocáveis e muitas controvérsias quanto ao assunto⁽⁶⁸⁾, o reagente mais utilizado para extração de cátions do solo de regiões não áridas é o acetato de amônio 1N com pH 7^(68, 69). Assim, utilizou-se o acetato de amônio para extração do rádio trocável. Para extração dos cátions, pesaram-se 10 g de solo e adicionaram-se 100 mL de acetato de amônio, em seguida agitou-se a solução durante a noite (16 horas). A solução foi separada do resíduo de solo por centrifugação seguida de filtração em papel quantitativo e em seguida foi diluída para um volume de 1 L com adição de água destilada. Procedeu-se à precipitação do Ba(Ra)SO₄ e a determinação como descrita por Rushnig et al.⁽⁶⁶⁾

4.5. FATOR DE TRANSFERÊNCIA

Existem diversos processos responsáveis pela transferência dos nuclídeos para a planta⁽⁹⁾. O primeiro é a liberação da fase sólida do solo para a solução do solo, seguida pelo movimento desses íons para localidades onde existam as raízes e, por fim, transporte através da membrana das raízes e o subsequente deslocamento para os tecidos. A transferência de

cátions para as plantas está intimamente ligada à disponibilidade dos nutrientes no solo. Além disso, as plantas também podem adsorver os radionuclídeos durante o seu crescimento por intermédio dos sedimentos depositados nas folhas.

Os processos de liberação e sorpção (absorção e adsorção) de rádio no solo são influenciados por outros cátions no sistema solo-solução. Cátions, tais como cálcio, são mantidos nas superfícies de coloides, argilas e matéria orgânica negativamente carregados como íons trocáveis nos solos. Eles podem evidentemente serem substituídos por cátions da solução de solo^(9,70).

Os fatores de transferência (FTs) são estimados de acordo com as concentrações dos radionuclídeos nas plantas e solos associados. Estes valores são descritos por $Ng^{(7)}$, como a relação adimensional das concentrações dos radionuclídeos em vegetais úmidos e as correspondentes concentrações nos solos secos ao ar. A transferência de um isótopo do solo para a planta depende de várias propriedades interligadas do solo. De acordo com a literatura^(7,9,71) os fatores ambientais (bióticos e abióticos) que afetam a transferência dos nuclídeos para as plantas são os seguintes:

- Fatores bióticos: espécie de plantas, sistema de raízes, metabolismo, estágio e taxa de crescimento, partes das plantas, densidade da vegetação e teor de cinzas.
- Fatores abióticos: solubilidade do nuclídeo, pH do solo, concentração de matéria orgânica, forma química e física do

nuclídeo, luminosidade, estação climática, textura do solo, mineral dominante na argila, teor de argila, concentração do nuclídeo no solo, capacidade de troca de cátions, cálcio e potássio trocáveis, outros cátions trocáveis.

Os efeitos dos fatores ambientais no estudo da acumulação de rádio pelas plantas tem sido largamente avaliados. A forma físico-química dos radionuclídeos determina sua solubilidade⁽⁷²⁾ e sua mobilidade⁽⁷³⁾ no solo. Kunasheva⁽⁷⁴⁾ estudou a influência do pH do solo na assimilação do rádio pelas plantas verificando que essa assimilação é maior em pH baixo (solo ácido). Rayno⁽⁷⁵⁾ demonstrou que a retenção de rádio no solo pode aumentar acima de uma ordem de grandeza em solos que contêm uma grande quantidade de matéria orgânica. A textura do solo é outro importante fator⁽⁷¹⁾ que afeta a disponibilidade. Em geral, partículas menores (argilas) aumentam a retenção de radionuclídeos no solo. Ashkinazi⁽⁷⁶⁾, por exemplo, encontrou um FT de 0,02 para ²²⁶Ra na cenoura colhida em solo argiloso e de 0,3 para batata colhida em solo arenoso. Não mencionou, entretanto, que as diferenças obtidas podem ser devidas à retenção de rádio no solo e às diferenças entre as capacidades de acumulação das espécies. A concentração de radionuclídeos no solo também afeta a acumulação desses radionuclídeos pelas plantas⁽⁷¹⁾. Sheppard⁽⁷⁷⁾ definiu que a acumulação de urânio nas plantas é diretamente proporcional à sua concentração no solo. O urânio é mais concentrado em tecidos jovens, isto é, grãos e extremidades das folhas.

Além disso, a presença de elementos semelhantes no meio pode afetar a acumulação de radionuclídeos. Este fenômeno tem sido estudado principalmente em termos da relação que existe entre cálcio e rádio. Ainda que a atividade química do rádio seja diferente daquela do cálcio, sua interação com o sistema biológico é similar, visto que eles competem nos mesmos processos (adsorção e absorção). Burkart et al.⁽⁷²⁾ encontraram uma correlação negativa entre a presença de cálcio no solo e a acumulação de rádio pelas plantas. Sugeriram, também, que a baixa dieta em cálcio pode favorecer a acumulação de rádio nos humanos. Essa relação entre rádio e cálcio não foi confirmada por outros autores; Grzybowska⁽³²⁾, entre outros, não encontrou elo entre esses dois elementos.

Pesquisadores⁽⁷⁸⁾ encontraram que matéria orgânica e argila são constituintes dominantes e contribuem para adsorção de rádio no solo. Matéria orgânica absorve cerca de 10 vezes mais rádio do que a argila, que por sua vez absorve mais do que outros solos minerais. Isto se deve à alta capacidade de troca de cátions que possui a matéria orgânica. Assim, em solos com baixas concentrações de matéria orgânica e argila, o rádio estará mais disponível para as plantas. Isso indica que os FTs para rádio aumentam na razão inversa da concentração de matéria orgânica. No presente trabalho as amostras somente foram coletadas quando em fase adulta e adequada ao consumo humano. Como a estimativa dos FTs baseados em vegetais úmidos, geralmente requer um controle adequado do teor de umidade, cuidados foram tomados para assegurar as condições de

umidade natural das amostras de cultivares.

Quando o rádio está presente em soluções diluídas, ele apresenta alta afinidade para adsorção na superfície de partículas de solo, sendo neste caso praticamente todo adsorvido⁽⁷⁹⁾. A medida que os locais vão sendo ocupados, há progressivamente menos chance para o soluto encontrar locais disponíveis. Foi encontrado que, embora o rádio seja absorvido no solo na presença de Ca^{2+} , o grau de adsorção do rádio decresce consideravelmente com o aumento da concentração de cálcio⁽⁹⁾.

A definição de fator de transferência (FT) como uma constante, admite que as concentrações nas plantas aumentem linearmente com o aumento da concentração no solo. Contudo, admitir que as concentrações nas plantas e no solo estão linearmente relacionadas pode ser uma aproximação falsa em algumas situações⁽⁹⁾. Na ausência de dados de radioisótopos, o FT pode ser estimado a partir da concentração de isótopos estáveis nas plantas e nos solos associados⁽⁷⁾.

Existem muitas controvérsias quanto a utilização da concentração total e da fração trocável do radionuclídeo para o cálculo do FT^(6,7,12,69,80). Experimentos realizados em diferentes tipos de solos⁽⁸¹⁾ mostraram que apenas o rádio trocável estava disponível para ser absorvido pelos vegetais.

Segundo Grzybwska⁽³²⁾ a influência de cálcio nas plantas com relação a transferência de rádio não é clara. O autor não encontrou correlação entre a transferência de rádio e a concentração de cálcio na planta, sugerindo que a concentração de cálcio nas plantas não influencia a transferência de rádio do solo para a planta.

O rádio é transferido ativamente para as folhas das plantas, sendo considerado o mais importante radionuclídeo natural em termos de transferência para as plantas⁽⁷¹⁾.

A transferência comparativa de radionuclídeos baseadas nos fatores obtidos da literatura, pode ser definida em termos da seguinte seqüência⁽⁷¹⁾:

forragem animal	Th < Pb = Po < Ra
plantas silvestres	U < Pb = Po = Th < Ra
cultura alimentar	Po < U < Pb < Ra

Tendo em vista o que foi exposto nesse item, tornou-se necessário investigar alguns fatores que poderiam influenciar a transferência de nuclídeos do solo para as culturas. Avaliaram-se os fatores citados na literatura como os mais influentes nessa transferência. Assim, foram feitas análises de cátions trocáveis tais como cálcio e potássio; também foram investigadas as influências da quantidade de matéria orgânica e do pH do solo. Essas análises foram executadas pelo Laboratório de Radioagronomia

do Departamento de Energia Nuclear da UFPE.

Para extração dos cátions trocáveis do solo, foi utilizada uma solução de cloreto de amônio 1N, enquanto que o pH foi medido usando uma solução de cloreto de cálcio 0,01M. Por outro lado, para determinar a quantidade de matéria orgânica utilizou-se uma solução de cromato de potássio.

4.6. INGESTÃO E AVALIAÇÃO DA DOSE

4.6.1. INGESTÃO DE ALIMENTOS PELA POPULAÇÃO

Para quantificar o consumo alimentar domiciliar "per capita" anual na área pesquisada, procedeu-se da seguinte forma: primeiro fez-se uso de uma pesquisa de orçamentos familiares do Instituto Brasileiro de Geografia e Estatística - IBGE⁽⁸²⁾, realizado na região metropolitana de Recife. Esta região engloba as cidades de Recife, Olinda, Jaboatão dos Guararapes, Cabo, Paulista, Abreu e Lima, Cruz de Rebouças, Igarassu, São Lourenço da Mata, Camaragibe, Moreno, Itapissuma e Itamaracá. Em seguida, foram visitadas residências rurais na área delimitada, onde a população utiliza a terra como meio de subsistência e, em pesquisa junto a ela, quantificou-se o consumo alimentar com relação apenas aos produtos agrícolas estudados nesse trabalho. Esse grupo rural foi considerado como sendo aquele que recebe a maior dose de radiação devida à presença do urânio na fosforita.

Para cálculo do consumo alimentar anual "per capita" das diferentes espécies de produtos agrícolas, observou-se o período de colheita (safra) de cada espécie na região delimitada, ou seja: a mangueira apresenta dois períodos de colheita, perfazendo um total de seis meses; o cajueiro produz durante três meses; a colheita do inhame e macaxeira (mandioca) é executada durante seis meses, enquanto que a batata-doce tem apenas quatro meses de safra; o milho é colhido desde a formação do caroço (milho verde) quando é usado para preparação de comidas típicas regionais até a colheita propriamente dita que é obtida quando o milho está "seco", neste estado ele é armazenado em silos para ser consumido até a próxima safra; o feijão por sua vez é usado na alimentação, principalmente na sua forma tradicional (seco), porém em um curto período de tempo ele é usado ainda verde sendo denominado na região "feijão verde"; o feijão também é armazenado em silos para ser consumido durante o ano até a próxima colheita.

Em todos os casos citados anteriormente, uma parte dos produtos é vendida nas feiras livres dos municípios de Paulista, Abreu e Lima, Cruz de Rebouças e Igarassu. Entretanto, não se tem conhecimento da quantidade de produtos que é colocada à venda nestas feiras.

Pelo contato mantido com as famílias que residem dentro da área de estudo, verificou-se que a grande maioria das pessoas nasceram no local, inclusive seus ancestrais diretos.

Os valores de consumo anual apresentados pelo IBGE⁽⁸²⁾, com relação à região metropolitana de Recife, apresentam alguns resultados diferentes dos encontrados em pesquisa direta junto às famílias residentes na zona rurais da área delimitada para estudo, mais especificamente as que forneceram as amostras analisadas nesse trabalho. Isto se deve principalmente ao fato de que estes produtos estão disponíveis em grande quantidade, podendo ser consumidos sem custos financeiros. Todos os valores de consumo, especificando cada tipo de cultura e as fontes através das quais foram obtidos os resultados, são apresentados na Tabela 2.

4.6.2. AVALIAÇÃO DA DOSE

O "Regulatory Guide"⁽⁸³⁾ faz uso de uma equação para cálculo de exposição à radiação causada pela ingestão de alimentos contendo substâncias radioativas. Os produtos de plantas envolvidos na equação foram divididos em cereais, frutas, raízes vegetais e verduras, para determinar a quantidade ingerida anualmente. Como em nosso caso foram feitas análises de cereais, leguminosas, frutas, tubérculos e raízes, os produtos foram agrupadas em três classes de alimentos (cereais e leguminosas, frutas, tubérculos e raízes). A equação para cálculo da dose (sem considerar os efeitos de preparação do alimento a nível doméstico) será:

$$H_{r1} = (U^{CL} \times C_r^{CL} + U^{Fr} \times C_r^{Fr} + U^{TR} \times C_r^{TR}) FCD_{r1}, \quad (3)$$

Tabela 2 - Consumo alimentar domiciliar "per capita" anual em kg.

GRUPO DE AMOSTRA	ESPÉCIE DE CULTURA	IBGE ⁽⁸²⁾ (kg/ano)	ESTE TRABALHO (kg/ano)
CEREAIS E LEGUMINOSAS	Feijão	12,783	28,3
	Milho	1,627	34,0
		27,819 ^(b)	
FRUTAS	Manga	0,413	17,4
	Banana	14,488	15,6
	Cajú	0,098	1,6
		47,169 ^(b)	
TUBÉRCULOS E RAÍZES	Batata-doce	2,298	21,2
	Inhame	5,284	28,1
	Macaxeira	1,127	38,3
	(mandioca) ^(a)	26,333 ^(b)	

Nota: a) Na avaliação da quantidade consumida de tubérculos e raízes, não levou-se em consideração a farinha de mandioca;

b) quantidade total consumida por ano de cada grupo de amostras segundo o IBGE.

onde

H_{r1} : dose anual resultante da ingestão do radionuclídeo r no órgão 1 em Sv/ano;

FCD_{r1} : fator de conversão de dose para ingestão do radionuclídeo r para o órgão 1 em Sv/Bq;

$U^{CL,Fr,TR}$: quantidades de alimentos ingeridos por ano em termos de cereais e leguminosas (CL), frutas (Fr), tubérculos e raízes (TR) em kg/ano;

$C_r^{CL,Fr,TR}$: concentração do radionuclídeo r em cereais e leguminosas, frutas, tubérculos e raízes em Bq/kg.

Para cálculo da dose efetiva devida à ingestão de urânio e ^{226}Ra foram utilizados os fatores de ponderação para órgãos e tecidos definidos na ICRP 60⁽⁸⁴⁾, os quais representam a contribuição relativa do órgão ou tecido para o detrimento devido aos efeitos resultantes da irradiação uniforme do corpo inteiro. Esta ICRP passou a adotar a definição de dose efetiva (E) ao invés da anterior que era definida como dose equivalente efetiva (H_E); neste trabalho será adotada a nova definição. Segundo as recomendações desta mesma ICRP, a dose efetiva é definida como a soma das doses equivalentes ponderadas em todos os tecidos e órgãos do corpo. Ela é dada pela seguinte equação:

$$E = \sum_T W_T \times H_T \quad (4)$$

onde H_T é a dose equivalente no tecido ou órgão T e w_T é o fator de ponderação do tecido ou órgão T.

Seguindo orientação da ICRP 60⁽⁸⁴⁾ foi definida a inclusão dentro do item órgãos e tecidos restantes, dos cinco tecidos mais

irradiados que não foram explicitamente enumerados na tabela dos fatores de ponderação usados para cálculo do valor da dose efetiva.

4.7. ESTIMATIVA DO RISCO

O principal dano biológico, correspondente a doses baixas e médias, devido à deposição interna de rádio é o aumento do risco de câncer no esqueleto. Para ^{226}Ra , os tipos de danos biológicos são⁽²⁷⁾: sarcomas de osso (principalmente osteosarcomas, fibrosarcomas e condrosarcomas) e carcinoma de crânio (carcinoma nas cavidades do crânio e na cavidade próxima à projeção do osso temporal atrás do ouvido).

Um grupo de pessoas, principalmente mulheres que trabalharam como pintoras de mostradores de relógios à base de rádio, é a base para os estudos quantitativos epidemiológicos devido à exposição interna provocada pela ingestão de rádio. Nesse grupo, constituído de cerca de 2940 pessoas⁽²⁷⁾, foram observados dois tipos de câncer: sarcoma de osso e carcinoma de crânio.

Os trabalhos mais recentes com relação aos trabalhadores das indústrias de relógios foram apresentados por Mays et al.⁽²⁷⁾ e Rowland et al.⁽⁴⁸⁾. Nesses trabalhos verificou-se que foi estabelecida uma relação dose-resposta que foi utilizada para estimar os riscos devido à exposição a baixas doses de rádio.

4.7.1. RISCO ACUMULADO PARA INDUÇÃO DE CARCINOMA DE CRÂNIO

Para calcular a taxa de incidência de carcinoma de crânio, devido à assimilação de ^{226}Ra no sangue, Rowland et al.⁽⁴⁸⁾ consideraram um período latente mínimo de 10 anos. Segundo eles, a curva que melhor descreve o risco de indução de carcinoma de crânio é dada pela relação:

$$IA_c = 4,32 \times 10^{-10} D_c \quad (\text{carcinoma de crânio/pessoa-ano}) , \quad (5)$$

onde

IA_c = excesso de incidência anual de carcinoma de crânio e

D_c = quantidade de ^{226}Ra acumulado no sangue durante a vida (Bq).

Admitindo uma expectativa de vida de 65 anos⁽⁸⁵⁾, somente a transferência de rádio durante 55 anos é considerada efetiva para induzir carcinomas de crânio, admitindo um período mínimo latente de 10 anos para esses tumores⁽⁴⁸⁾.

A quantidade de ^{226}Ra acumulada no sangue durante a vida (D_c) foi determinada da seguinte forma:

$$D_c = A \times B \times T_1 \quad (6)$$

onde

A = quantidade de ^{226}Ra que passa para o sangue em Bq/dia;

$B = 365$ dias/ano;

$T_1 = 55$ anos.

O risco médio no decorrer da vida (TM_c) foi calculado levando em consideração a taxa de risco no início (zero) e final da vida, desta forma teremos:

$$TM_c = (0 + IA_c) / 2 \quad (\text{carcinoma de crânio/pessoa-ano}) \quad (7)$$

Para cálculo do risco acumulado (RC_c) é levado em consideração um período de 55 anos, assim:

$$RC_c = TM_c \times T_1 \quad (8)$$

4.7.2. RISCO ACUMULADO PARA INDUÇÃO DE SARCOMA DE OSSO

Para calcular a taxa de incidência de sarcoma de osso, os mesmos autores verificaram que a equação que melhor descreve o risco é dada pela exponencial⁽⁸⁶⁾:

$$IA_o = 1,9 \times 10^{-10} D_o^2 e^{-0,0011 D_o} \quad (\text{sarcoma de osso/pessoa-ano}) \quad (9)$$

onde

IA_o = excesso de incidência anual de sarcoma de osso,

D_o = é a quantidade de ^{226}Ra acumulada no sangue durante a vida (Bq).

Para baixos valores de ingestão, a exponencial na equação (9) aproxima-se da unidade e o cálculo da incidência anual para ^{226}Ra varia com o quadrado da transferência. Em baixas doses a incidência anual calculada para ^{226}Ra rapidamente aproxima-se de zero.

Segundo Rowland et al.⁽⁸⁶⁾, o ajuste mais aceitável para o risco de sarcoma de osso, devido à acumulação de pequenas quantidades de rádio, será:

$$IA_0 = 2,7 \times 10^{-10} D_0 \quad (\text{sarcoma de osso/pessoa-ano}), \quad (11)$$

Para um tempo de vida de 65 anos, somente a ingestão de ^{226}Ra durante os primeiros 60 anos é considerada capaz de induzir sarcomas em ossos. Considerando um período mínimo latente de 5 anos, teremos⁽⁴⁸⁾:

$$D_0 = A \times B \times T_2 \quad (12)$$

onde

A = transferência de ^{226}Ra para o sangue, em Bq/dia;

B = 365 dias/ano;

T_2 = 60 anos.

O cálculo do risco médio no decorrer da vida (RC_0) segue o mesmo critério da equação (7):

$$TM_0 = (I_0 + IA_0) / 2 \quad (13)$$

Para cálculo do risco acumulado (RC_0), considera-se o tempo de 60 anos, assim:

$$RC_0 = TM_0 \times T_2 \quad (14)$$

A transferência sistemática de ^{226}Ra para o sangue é geralmente calculada durante o período de exposição. Essa quantidade é estimada pelas medidas da concentração no corpo em períodos posteriores à exposição⁽⁴⁶⁾. A "U. S. Environmental Protection Agency" (USEPA)⁽⁴⁸⁾, seguindo o conceito apresentado na ICRP 26, determinou o valor da absorção gastrointestinal, o valor encontrado foi de 21%. Mays et al.⁽²⁷⁾ também determinaram esse valor, o qual foi de 20%. Porém nesse trabalho adotou-se o valor de 21%⁽⁴⁸⁾ no cálculo da transferência para o sangue.

Capítulo V

RESULTADOS E DISCUSSÃO

5.1. DADOS DE URÂNIO E ^{226}Ra EM CULTIVARES

Para facilitar a apresentação dos dados, os cultivares foram agrupados em três categorias: cereais e leguminosas (milho e feijão), frutas (banana, cajú e manga), tubérculos e raízes (batata-doce, mandioca e inhame).

Após o tratamento químico das cinzas dos cultivares, a concentração de urânio foi determinada por fluorimetria. As análises foram realizadas em triplicatas e as concentrações foram determinadas usando duas curvas de calibração, utilizando padrões de urânio. As análises de ^{226}Ra foram realizadas após dissolução das cinzas e coprecipitação do rádio com bário. A calibração do sistema foi executada com fontes padrão fornecidas pelo IRD-CNEN/RJ. Os resultados foram obtidos em duplicatas, segundo os procedimentos descritos no capítulo anterior. Na Tabela 3 pode-se observar os valores das concentrações de urânio e ^{226}Ra nos cultivares da área de estudo, localizada na região fosfática de Pernambuco.

Nesta tabela verifica-se que existem largas variações nas concentrações de urânio e principalmente de ^{226}Ra , entre as amostras

Tabela 3. Concentração de urânio e ^{226}Ra em cultivares da região urano-fosfática de Pernambuco

LOCALIZAÇÃO	CULTURA	CONCENTRAÇÃO (mBq/kg de peso úmido)	
		URÂNIO	^{226}Ra
S-01	Banana-01	23,1 ± 3,9 ^(a)	140 ± 20
S-02	Inhame-02	38,0 ± 5,0	875 ± 16
	Macaxeira-02 (mandioca)	33,9 ± 5,8	180 ± 9
	Batata-doce-02	78,8 ± 8,0	447 ± 22
S-03	Banana-03	21,0 ± 4,1	208 ± 14
S-04	Macaxeira-04 (mandioca)	56,8 ± 5,7	205 ± 9
	Inhame-04	26,8 ± 4,8	190 ± 17
S-05	Cará-05	14,1 ± 3,6	143,7 ± 7,3
S-06	Macaxeira-06 (mandioca)	32,2 ± 4,6	345 ± 13
S-07	Banana-07a	61,9 ± 5,0	174 ± 24
	Banana-07b	52,8 ± 4,9	300 ± 21
	Manga-07	52,7 ± 7,8	148,7 ± 7,4
S-08	Feijão-08	137 ± 10	724 ± 43
S-09	Macaxeira-09 (mandioca)	41,0 ± 4,1	204,7 ± 8,0
S-10	Milho-10	17,9 ± 8,9	92,1 ± 5,5
S-11	Cajú-11	186 ± 11	131,0 ± 7,4
S-12	Batata-doce-12	86,1 ± 3,8	90,8 ± 4,2

LOCALIZAÇÃO	CULTURA	CONCENTRAÇÃO (mBq/kg de peso úmido)	
		URÂNIO	²²⁶ Ra
S-13	Batata-doce-13	17,8 ± 3,0	345 ± 24
	Milho-13	15,1 ± 2,9	179 ± 10
S-14 A	Macaxeira-14A (mandioca)	26,8 ± 3,0	320,0 ± 8,7
	Inhame-14A	26,7 ± 3,1	266 ± 13
S-14 B	Milho-14B	19,2 ± 2,7	120 ± 6
	Batata-doce-14B	87,7 ± 9,0	2.209 ± 26
	Inhame-14B	19 ± 5	120 ± 6
S-15	Macaxeira-15 (mandioca)	34,8 ± 2,4	1.607 ± 80
S-16	Macaxeira-16 (mandioca)	43,2 ± 5,2	196 ± 14
S-17	Macaxeira-17 (mandioca)	13,2 ± 0,7	390 ± 19
	Inhame-17	33,3 ± 2,5	382 ± 19
S-18	Batata-doce-18	12,9 ± 0,7	638 ± 31
	Banana-18	37,8 ± 2,4	144 ± 9
S-19	Feijão-19a	78,7 ± 7,1	784 ± 55
	Feijão-19b	76,9 ± 8,0	778 ± 38
S-20	Banana-20	27,6 ± 1,9	71,1 ± 4,3
S-21	Feijão-21	30,9 ± 1,8	706 ± 35
S-22	Banana-22	31,1 ± 1,9	65,0 ± 4,6
S-23	Cajú-23	31,8 ± 2,0	53,1 ± 3,5

LOCALIZAÇÃO	CULTURA	CONCENTRAÇÃO (mBq/kg de peso úmido)	
		URÂNIO	²²⁶ Ra
S-24	Macaxeira-24 (mandioca)	21,1 ± 1,5	238 ± 12
S-25	Batata-doce-25	20,0 ± 4,2	300 ± 15
S-26	Manga-26	17,9 ± 1,5	108,7 ± 5,9
S-27	Cajú-27	25,7 ± 2,3	42,9 ± 3,3
S-28	Manga-28	53,2 ± 2,4	84,8 ± 4,6

Nota: (a) atividade média ± desvio padrão.

de uma mesma espécie, tornando-se bastante acentuada entre as amostras de batata-doce e mandioca. Na amostra de batata-doce existe uma variação de concentração de ²²⁶Ra de um fator de aproximadamente 24 e para urânio de 7. Enquanto que as amostras de macaxeira, inhame, feijão, milho, banana, manga e cajú apresentaram uma faixa de variação para ²²⁶Ra que vai de 180 a 1.607, 120 a 875, 706 a 784, 92 a 179, 65 a 300, 85 a 149 e 43 a 131 mBq/kg, respectivamente; e de 13 a 57, 19 a 38, 31 a 137, 15 a 19, 21 a 62, 18 a 53 e 26 a 186 mBq/kg para urânio, respectivamente. Dessa forma, observa-se que a menor faixa de variação entre as amostras de mesma espécie está no milho. A faixa de variação de ²²⁶Ra em todas as amostras analisadas ficou entre 43 e 2.209 mBq/kg, enquanto que para o urânio ficou entre 13 e 186 mBq/kg. O feijão

foi a espécie que apresentou a maior concentração média de urânio e de ^{226}Ra , porém o cajú também apresentou a mesma média para urânio.

Nas amostras de frutas a concentração de ^{226}Ra mais elevada está entre as bananas, enquanto que a maior concentração de urânio encontra-se entre as amostras de cajú. As bananas apresentam concentrações de ^{226}Ra mais elevadas no ponto S-07, enquanto que as concentrações mais altas de urânio estão no cajú do ponto S-11.

Já entre os tubérculos e raízes, os níveis mais elevados tanto de ^{226}Ra quanto de urânio ocorreram nas amostras de batata-doce do ponto S-14. Porém, foi encontrada uma concentração bastante elevada, também na mandioca.

Quanto aos cereais e leguminosas, o feijão foi o que apresentou valores mais elevados de urânio e rádio, sendo que as mais altas concentrações estão nos pontos S-08 e S-19, respectivamente. Em todos os casos as concentrações de urânio foram sempre inferiores às de ^{226}Ra .

A grande dispersão dos valores de concentração entre as amostras de diferentes tipos de culturas, possivelmente é resultante das diferenças de capacidade de absorção de urânio e rádio. Essas diferenças dependem dos níveis de urânio e ^{226}Ra trocáveis nos solos de locais dos cultivos que variaram

consideravelmente bem como das variações das características físico-químicas do solo.

Foram realizadas análises de correlação entre as concentrações de urânio e ^{226}Ra (peso úmido) nos cultivares e as concentrações de urânio e ^{226}Ra trocáveis nos respectivos solos (Tabela 5). Nas amostras analisadas não se verificou uma correlação estatisticamente significativa ($r=0,03$ para o urânio e $r=0,28$ para o ^{226}Ra), como pode ser observada nas Figuras 17a e 17b, respectivamente. Essas observações estão de acordo com os resultados de um estudo realizado em outras áreas de alta radioatividade natural do Brasil^(8,87).

Foi realizado um teste para verificar se existe correlação entre a quantidade de urânio e ^{226}Ra nas culturas. Os resultados mostraram que não existe correlação ($r= 0,26$) entre estes elementos nos cultivares analisados, como pode ser constatado na Figura 18.

As concentrações de urânio e rádio nas culturas seguem uma distribuição lognormal segundo a prova de aderência de Kolmogorov-Smirnov⁽⁸⁸⁾, onde o coeficiente (p) mostrou-se como não significativo; os gráficos de distribuição podem ser vistos nas Figuras 19a e 19b, respectivamente. Não foi possível verificar se existem variações sazonais na atividade de urânio e ^{226}Ra nas culturas porque o período de colheita foi sempre o mesmo ao longo

dos anos.

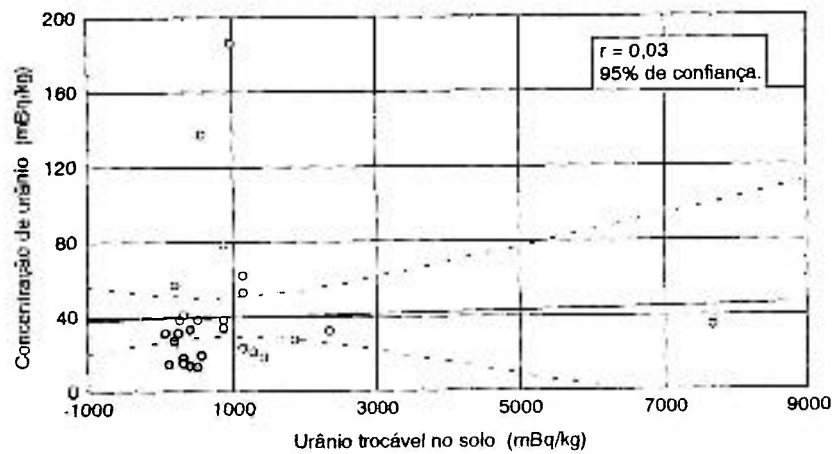


Figura 17a. Correlação entre urânio no solo e nos cultivares

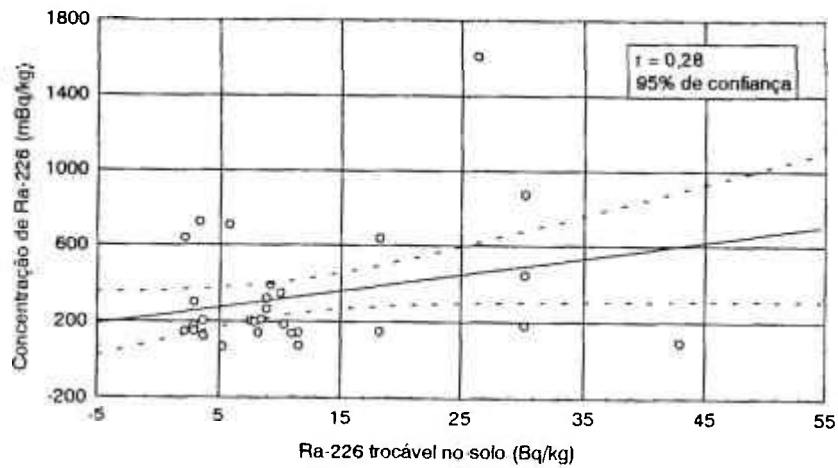


Figura 17b. Correlação entre o ^{226}Ra no solo e nos cultivares

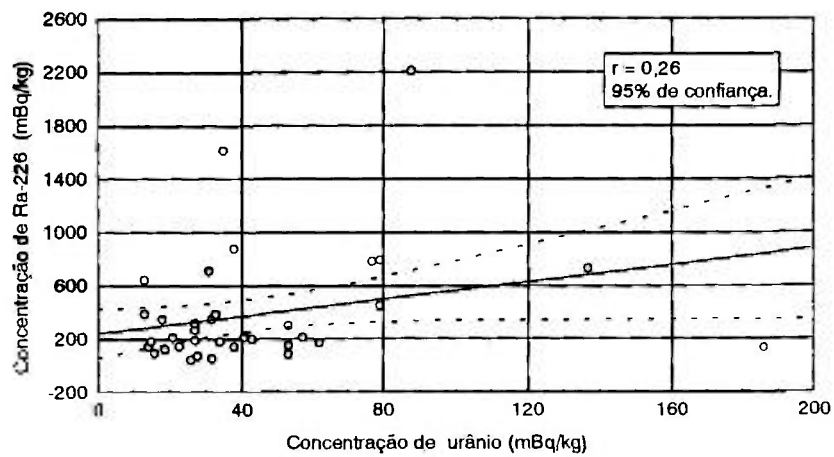


Figura 18. Correlação entre o urânio e o ^{226}Ra nos cultivares

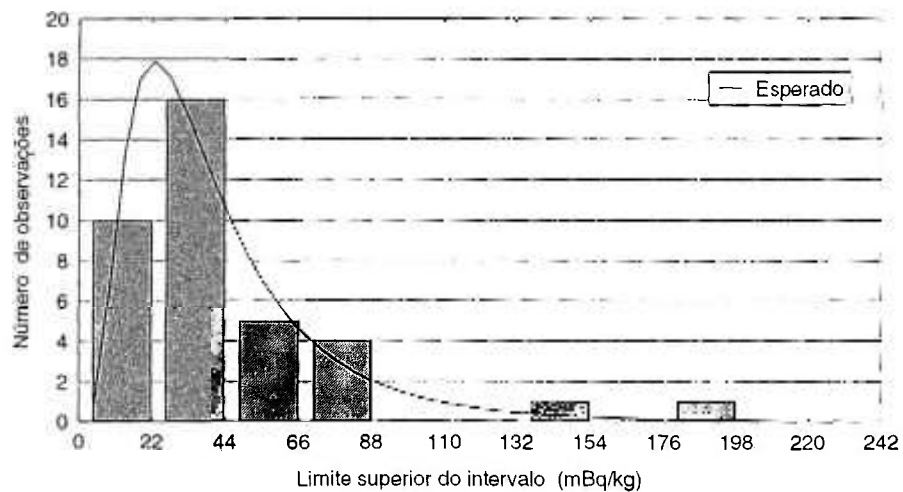


Figura 19a. Distribuição lognormal do urânio nos cultivares

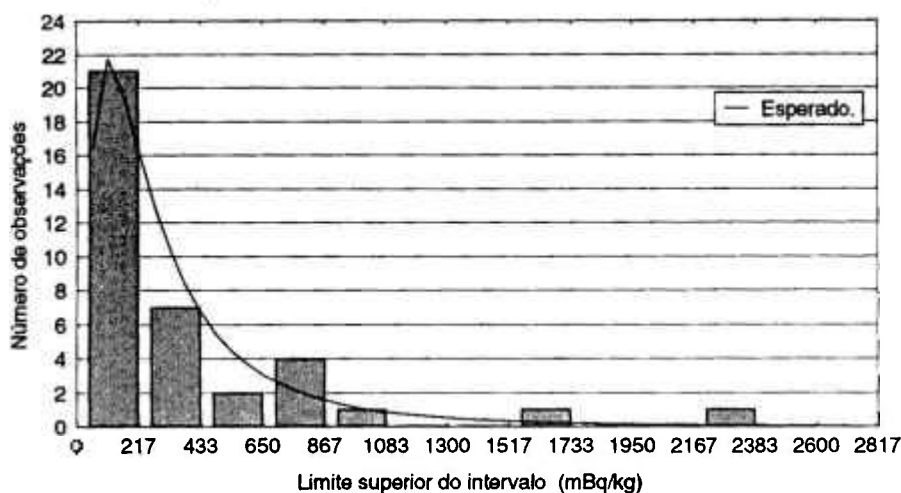


Figura 19b. Distribuição lognormal do ^{226}Ra nos cultivares

O tratamento estatístico utilizado para determinar a concentração média de uma série de medidas experimentais pode resultar em valores significativamente diferentes. O êxito da aplicação de diferentes fórmulas para estimar a média verdadeira varia de acordo com a distribuição estatística dos dados das amostras⁽⁹⁾. Em geral, os resultados de concentração são lognormalmente distribuídos e a média geométrica dos valores medidos fornece a estimativa mais exata⁽¹⁸⁾. Contudo, esses mesmos autores consideram que a média aritmética produzirá um valor mais conservativo razão pela qual foi usada neste trabalho. Na Tabela 4, são encontradas as concentrações médias (aritméticas) e a faixa de variação da concentração de urânio e ^{226}Ra nos cultivares.

Um estudo em hortas contaminadas por rejeitos de processamento de urânio em Ontario-Canadá apresentou concentração média geométrica de ^{226}Ra em batata, feijão e milho de 4,9; 6,7 e 1,9 pCi/kg (181, 248 e 70 mBq/kg) de peso úmido, respectivamente. Por outro lado, o urânio apresentou uma média geométrica de 0,6; 1,8 e 0,5 ng/g (15, 45 e 12 mBq/kg) de peso úmido, respectivamente⁽¹²⁾. Se tomarmos as médias geométricas dos valores encontrados neste trabalho, observamos que elas são superiores às encontradas em Ontario-Canadá.

A concentração de ^{226}Ra encontrada em alimentos (raízes vegetais) cultivados na região de Araxá foi de 1,5 pCi/g⁽⁸⁹⁾ de cinzas, enquanto que a concentração média na região fosfática de Pernambuco foi de 1,7 pCi/g de cinzas. Os valores apresentados são da mesma ordem de grandeza. Em um outro trabalho, foram determinadas as concentrações médias de ^{226}Ra em feijão e milho de alguns locais do Planalto de Poços de Caldas, as quais foram de 11,6 e 3,2 pCi/kg (429 e 118 mBq/kg) peso úmido, respectivamente, com uma faixa de variação de 4,4 a 22,7 e 1,9 a 6,2 pCi/kg (163 a 840 e 70 a 229 mBq/kg), respectivamente⁽⁸⁾. Verifica-se que as concentrações encontradas no Planalto de Poços de Caldas estão na mesma faixa daquelas encontradas neste trabalho.

Em três cidades⁽²³⁾ dos Estados Unidos, as concentrações de ^{226}Ra em alimentos variaram de 0,1 a 2,3 pCi/kg (3,7 a 85,7 mBq/kg) de peso úmido para batata e 0,7 a 4,8 pCi/kg (25,9 a 177,6

Tabela 4. Média aritmética e faixa de variação da concentração de urânio e ^{226}Ra nos cultivos

CULTURAS	MÉDIA ARITMÉTICA (mBq/kg úmido)		FAIXA DE VARIAÇÃO (mBq/kg úmido)	
	URÂNIO	^{226}Ra	URÂNIO	^{226}Ra
CEREAIS E LEGUMINOSAS	54	483	15-137	92-784
FRUTAS	48	129	18-186	43-300
TUBÉRCULOS E RAÍZES	36	461	13-88	91-2.209

mBq/kg) de peso úmido para feijão, enquanto que na Itália⁽²⁴⁾ essas concentrações em batatas e frutas foram de 0,50 e 0,37 pCi/kg (18,5 e 13,7 mBq/kg) de peso úmido, respectivamente. Comparando estes valores com os apresentados na Tabela 3, observa-se que os alimentos cultivados na região de estudo possuem uma faixa de variação de concentração bem mais ampla e superior.

Morishima et al.⁽⁹⁰⁾ encontraram uma concentração de urânio em batata-doce igual a 0,029 $\mu\text{g/g}$ de cinzas e em frutas 0,043 $\mu\text{g/g}$ de cinzas. Na região fosfática pernambucana, as concentrações médias de urânio em cinzas de batata-doce e frutas foram de 0,305 e 0,512 $\mu\text{g/g}$, respectivamente. Observa-se que as concentrações nessas duas amostras da região fosfática, apresentam-se superiores

de um fator de 11 e 12, respectivamente.

Frindik⁽⁹¹⁾ determinou a concentração total de urânio em plantas cultivadas em solos de várzeas na Alemanha. Ele encontrou uma concentração média de 95 e 72 mBq/kg de peso úmido para feijão e batata, respectivamente. Os valores de concentrações média para o feijão e batata encontrados na região da fosforita foram de 81 e 51 mBq/kg de peso úmido, portanto da mesma ordem de grandeza.

5.2. DADOS DE URÂNIO E ²²⁶Ra NOS SOLOS ASSOCIADOS

Para investigar as causas das variações da concentração dos radionuclídeos em uma mesma espécie e a quantidade existente no solo disponível para absorção, foi coletado o solo associado a cada cultura em diferentes profundidades.

Na Tabela 5 encontram-se os valores da concentração de urânio e ²²⁶Ra trocáveis e totais em três profundidades de solo dos respectivos locais onde os produtos agrícolas foram cultivados. Os valores de urânio e ²²⁶Ra total foram determinados por espectrometria gama, enquanto que o rádio trocável foi determinado pela técnica de Rushing⁽⁶⁶⁾ e o urânio trocável foi determinado por fluorimetria.

As concentrações de urânio e ²²⁶Ra trocáveis nos solos até 40 cm de profundidade apresentam um fator de variação de

Tabela 5. Concentração de urânio e ^{226}Ra no solo

SOLO ^(a)	CONCENTRAÇÃO TROCÁVEL (solo seco)		CONCENTRAÇÃO TOTAL (Bq/kg de solo seco)	
	URÂNIO (mBq/kg)	^{226}Ra (Bq/kg)	URÂNIO	^{226}Ra
S-01/04	1.140±12	11,5±0,6	112±15	83,1±4,6
S-01/48	3.669±99	15,8±0,7	140±31	108±9
S-01/812	8.924±669	15,6±0,8	(b)	(b)
S-02/04	880±25	30,3±1,4	154±24	107±14
S-02/48	2.268±185	20,6±0,2	179±45	123±10
S-02/812	2.268±69	22,1±1,2	205±18	148±7
S-03/04	1.289±37	8,5±0,4	123±47	47,2±6,8
S-03/48	1.103±87	6,6±0,3	110±33	99±10
S-03/812	1.908±87	7,2±0,3	89±17	80±10
S-04/04	198±12	3,7±0,2	149±29	40,9±4,6
S-04/48	260±37	4,2±0,3	139±29	43,1±4,8
S-05/04	124±37	8,3±0,4	68±4	40,7±6,9
S-05/48	619±12	17,9±0,9	83±12	68,8±5,8
S-05/812	496±50	16,9±1,0	55±15	67,1±5,9
S-06/04	2.355±37	10,1±0,4	186±16	172±17
S-06/48	3.349±50	9,1±0,4	195±11	200±20
S-06/812	7.164±412	8,5±0,4	197±20	200±19
S-07/04	1.153±87	3,0±0,2	180±24	94±10
S-07/48	1.586±124	6,2±0,6	184±7	99±11
S-07/812	1.487±111	7,9±0,5	184±17	108±7
S-08/04	570±37	3,3±0,3	53±2	34,0±3,6
S-08/48	409±25	4,1±0,4	57±2	20,8±1,9
S-08/812	372±12	4,3±0,3	45±3	38,8±3,7

SOLO ^(a)	CONCENTRAÇÃO TROCÁVEL (solo seco)		CONCENTRAÇÃO TOTAL (Bq/kg de solo seco)	
	URÂNIO (mBq/kg)	²²⁶ Ra (Bq/kg)	URÂNIO	²²⁶ Ra
S-09/04	309±37	7,6±0,3	55±4	49,3±3,8
S-09/48	1.388±87	7,8±0,3	64±2	46,2±8,2
S-10/04	1.425±186	42,9±0,3	106±10	108±13
S-10/48	3.272±198	43,7±0,3	109±39	92±12
S-11/04	992±37	11,1±0,3	110±11	109±28
S-11/48	870±24	9,1±0,4	97±12	92,9±5,8
S-11/812	1.834±12	10,8±0,4	101±10	95±11
S-12/04 ^(c)	-	-	-	-
S-13/04	310±12	10,4±0,4	82±5	50,2±8,0
S-14/04A	236±37	8,9±0,4	38±8	36,0±3,1
S-14/04B	570±37	3,7±0,6	58±7	29±1
S-14/48B	125±12	3,9±0,3	56±7	26±2
S-15/04	7.672±558	26,4±1,1	300±34	207±9
S-15/48	11.527±583	25,4±1,9	275±56	240±11
S-16/04	347±62	8,0±0,4	132±15	58±5
S-16/48	1.189±62	20,4±1,3	180±10	84±18
S-17/04	409±25	9,2±0,5	138±3	53±2
S-17/48	2.293±260	15,4±0,8	162±16	63±3
S-18/04	521±25	18,3±0,7	84±2	78±4
S-19/04	260±50	2,2±0,1	58±8	30,1±3,3
S-20/04	1.859±24	11,5±0,3	125±11	148±7
S-20/48	1.648±87	16,2±0,8	122±14	111±4

SOLO ^(a)	CONCENTRAÇÃO TROCÁVEL (solo seco)		CONCENTRAÇÃO TOTAL (Bq/kg de solo seco)	
	URÂNIO (mBq/kg)	²²⁶ Ra (Bq/kg)	URÂNIO	²²⁶ Ra
S-21/04	162±37	5,8±0,3	68±8	65,1±8,7
S-21/48	347±25	5,2±0,5	115±11	57±3
S-22/04 ^(c)	-	-	-	-
S-23/04	248±25	5,2±0,3	40±2	50,3±5,7
S-23/48	545±37	11,9±0,6	49±3	53±5
S-23/812	1.215±24	16,9±0,9	56±4	52,8±6,6
S-24/04 ^(c)	-	-	-	-
S-25/04 ^(c)	-	-	-	-
S-26/04	1.078±74	4,1±0,2	36±2	22,3±4,0
S-26/48	607±24	4,6±0,2	50±3	19,0±4,7
S-26/812	860±96	4,6±0,3	57±3	18,3±3,6
S-27/04	310±24	4,2±0,2	15±2	15,8±2,3
S-27/48	756±37	3,5±0,2	26±1	14,4±2,1
S-27/812	917±59	2,5±0,1	43±2	14,2±3,3
S-28/04	417±37	11,5±0,6	90±4	83±5
S-28/48	2.591±161	16,9±0,9	147±3	70±3
S-28/812	2.752±214	17,5±0,9	128±13	84±5

Nota: (a) para as amostras de solo:

S-01/04 significa solo do ponto 01 a uma profundidade até 40 cm, S-01/48 significa o mesmo local com profundidade entre 41 e 80 cm e S-01/812 o mesmo local com profundidade entre 81 e 120 cm;

(b) houve contaminação da amostra;

(c) não foi possível coletar o solo.

aproximadamente 20 e 62, respectivamente, mostrando uma disponibilidade variável para ser absorvida pela planta. Não se encontrou predominância de acréscimo ou decréscimo de concentração em função da profundidade.

As concentrações de urânio total, nas amostras de solo apresentadas na Tabela 5, variaram de 15 a 300 Bq/kg apresentando um fator de variação de 20. O urânio trocável variou de 0,12 a 11,5 Bq/kg (peso seco) com um fator de 93 entre diferentes pontos de coleta. O ^{226}Ra total variou de 14 a 240 Bq/kg, com um fator de 17. O rádio trocável apresentou um fator de 20 e um intervalo de concentração de 2,2 a 43,7 Bq/kg, correspondendo de 7 a 48% do rádio total. Esses resultados estão próximos aos encontrados no Planalto de Poços de Caldas^(11,92). Os valores médios para rádio trocável e total foram de 7,2 e 150 Bq/kg, respectivamente.

As percentagens de urânio e ^{226}Ra trocáveis com relação ao total, até a profundidade de 40 cm, variaram de 0,1 a 3% e de 3 a 40%, respectivamente. Entretanto a concentração de rádio trocável em um mesmo ponto, para diferentes profundidades, variou de um fator de 1,0 a 3,3; enquanto que a concentração de urânio trocável variou de um fator de 1,1 a 7,8.

Observando as Tabelas 3 e 5, verifica-se que a baixa

concentração de urânio nas culturas pode ser devida à pequena quantidade desse elemento que se encontra disponível no solo e que pode ser absorvido.

Ao contrário da inexistência de correlação entre as concentrações de urânio e rádio nos cultivares, encontrou-se uma razoável correlação ($r=0,72$) entre as transferências desses radionuclídeos para as plantas, como pode ser visto na Figura 20. Concluiu-se que apesar da baixa atividade de urânio trocável no solo em relação à atividade de ^{226}Ra trocável, esses radionuclídeos são transferidos em proporções aproximadamente iguais para as culturas.

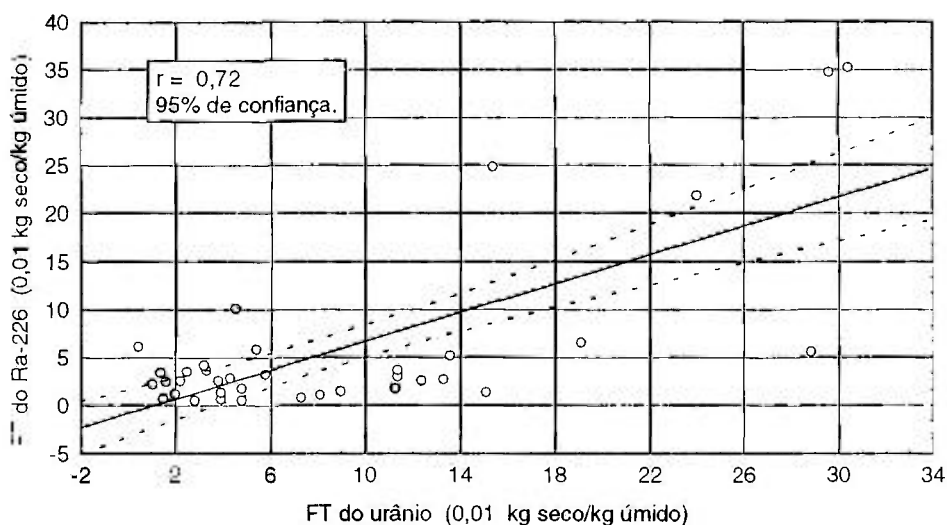


Figura 20. Correlação entre os FTs do urânio e ^{226}Ra nos cultivares

Para verificar o comportamento do urânio e rádio trocáveis e totais nos solos até a profundidade de 40 cm, foram feitos alguns testes relacionados a esses parâmetros, ou seja:

- a) correlação entre rádio total e trocável no solo (Figura 21);
- b) correlação entre urânio total e trocável no solo (Figura 22);
- c) correlação entre urânio trocável e rádio trocável no solo (Figura 23) e;
- d) correlação entre urânio total e rádio total no solo (Figura 24).

Na Figura 21, observa-se uma baixa correlação ($r=0,56$) entre as concentrações de rádio total e trocável nos solos, mostrando que a influência das características físico-químicas do solo nos diferentes locais de coleta é grande. Entretanto, essa influência não é tão acentuada no caso do urânio (Figura 22), como pode ser constatado pelo coeficiente de correlação ($r=0,78$) entre o urânio total e trocável.

Relacionando-se urânio trocável e rádio trocável, como pode ser visto na Figura 23, a correlação pode ser considerada inexistente, demonstrando que o urânio e ^{226}Ra se comportam de forma diferente na interface solo-solução do solo. No entanto, a correlação ($r=0,82$) entre o urânio total e rádio total apresentada na Figura 24 indica um razoável equilíbrio entre o ^{238}U e ^{226}Ra .

Amaral⁽¹¹⁾ apresentou valores de concentração de radionuclídeos naturais em solos de fazendas do Planalto de Poços

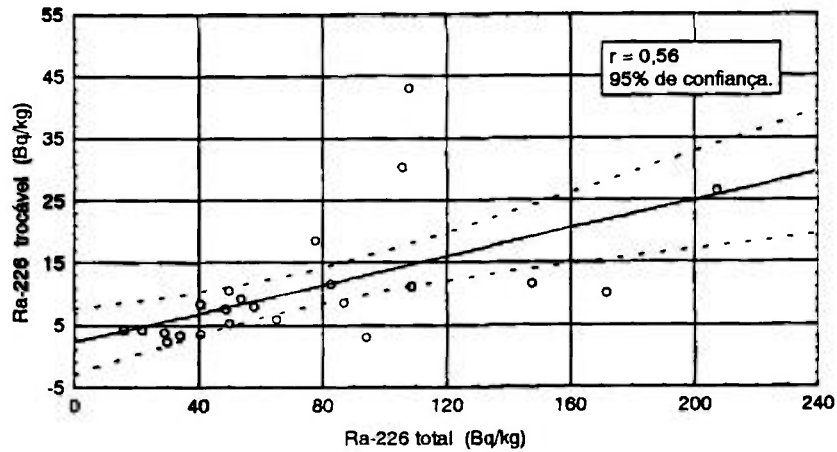


Figura 21- Correlação entre o Ra-226 total e trocável na profundidade A.

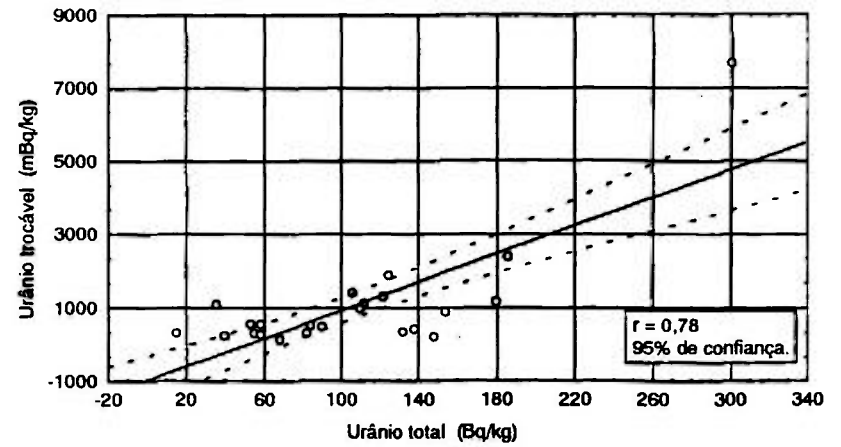


Figura 22- Correlação entre o urânio total e trocável na profundidade A.

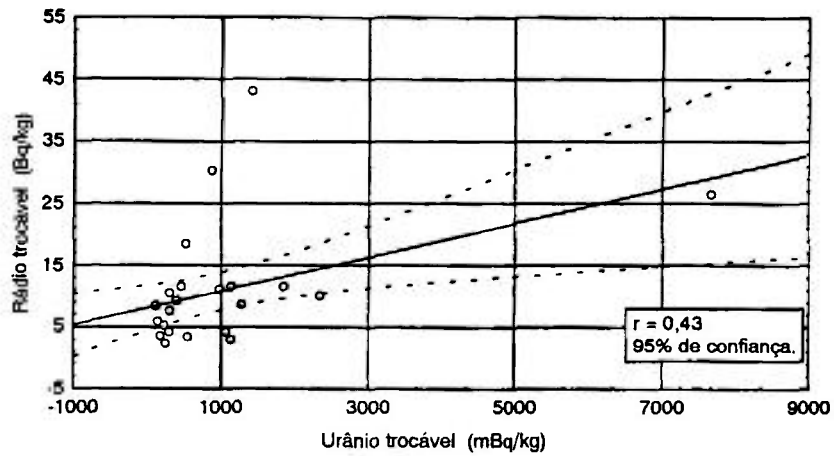


Figura 23- Correlação entre o urânio e Ra-226 trocáveis na profundidade A.

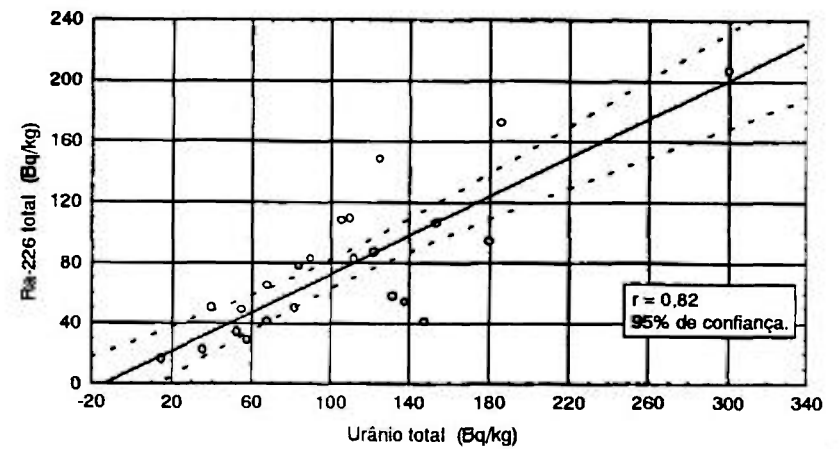


Figura 24- Correlação entre o urânio total e Ra-226 total na profundidade A.

de Caldas, os quais estão numa faixa de 116 a 406 Bq/kg de ^{238}U (peso de solo seco); e de 35 a 448 Bq/kg de ^{226}Ra . Apresentou, também, a média geométrica destas concentrações que foi de 206 e 135 Bq/kg de peso seco, respectivamente. Em outro levantamento, Lima e Penna-Franca⁽⁶⁾ apresentaram valores representativos de ^{226}Ra nos solos de quatro fazendas do Planalto de Poços de Caldas. Estes valores estão na faixa de 84 a 214 Bq/kg de peso seco. Observa-se que esses valores são da mesma ordem de grandeza dos encontrados na área fosfática de Pernambuco.

Diversas regiões do planeta apresentam concentrações de radionuclídeos das séries de decaimento do urânio mais alta do que o normal em solos. Valores de concentração de ^{226}Ra em plantas e solos de regiões de alta radioatividade natural são apresentados na Tabela 6. Observando esta tabela, verifica-se que os valores são da mesma ordem de grandeza dos encontrados na área analisada, exceto para o solo onde foi cultivado o feijão do Irã.

5.3. AVALIAÇÃO DOS MÉTODOS

Para determinar os valores da precisão e da exatidão nas análises de urânio por fluorimetria, foram utilizados padrões da USEPA. Os valores médios encontrados foram de 7,7 e de 9,0%, respectivamente; o limite de detecção foi de 1 mBq/g de cinzas. Também fez-se comparação entre os resultados de algumas amostras de cinzas obtidos por fluorimetria e ativação com nêutrons, nesse caso

Tabela 6. Concentração de ^{226}Ra em gêneros alimentícios (peso úmido) e solos de regiões de alta radioatividade natural

LOCAL	GÊNERO ALIMENTÍCIO	^{226}Ra (Bq/kg)	
		PLANTA	SOLO
BRASIL ⁽⁹⁾	Banana	0,2	-
	Milho	0,4	-
		0,1	30-503
	Mamão	0,2	-
		0,07	-
	Batata	0,3	-
		0,1	30-503
	Feijão	0,44	30-503
Cenoura	0,41	30-503	
IRAN ⁽⁹⁾	Feijão ^(a)	7,4-110	780-14700
	Milho ^(a)	30	22
	Batata ^(a)	30	850

Nota: (a) peso de cinzas

o erro relativo foi de 14,3%.

Nas análises por espectrometria gama o limite de detecção para 300 g de amostra foi de aproximadamente 6 Bq/kg para urânio e 7 Bq/kg para ^{226}Ra , para um período de contagem de 2×10^5 segundos. Alguns resultados de análise de solo obtidos por espectrometria gama foram comparados com dados de análise por ativação com nêutrons fornecidos pelo IPEN/CNEN-SP e o erro relativo encontrado

para as amostras de solos foi de 5,8%. Da mesma forma foram usadas cinco amostras ambientais da USEPA com vários radionuclídeos emissores gama, a exatidão foi de 6,7%.

A precisão e a exatidão na determinação de ^{226}Ra foram verificadas periodicamente utilizando padrões da USEPA, em convênio com o IRD-CNEN/RJ, como parte de um programa de intercomparação. Os valores médios encontrados foram de 4,4% e de 4,9%, respectivamente; enquanto que o limite de detecção do sistema foi de aproximadamente 3 mBq/g. Todos os procedimentos estatísticos utilizados encontram-se no apêndice.

5.4. FATOR DE TRANSFERÊNCIA

A estimativa dos fatores de transferência (FTs) baseada em amostras úmidas, geralmente requer um controle adequado da umidade, a qual contribui com a incerteza associada ao FT. Para tanto manteve-se as condições de umidade natural das amostras até o momento da pesagem inicial.

Vários autores^(6,7,12,69,80) utilizaram a concentração total do radionuclídeo no solo para cálculo do FT, porém existe muita discussão quanto à utilização da fração trocável ou total para este cálculo. Experimentos realizados em diferentes tipos de solos⁽⁸¹⁾ mostraram que apenas o rádio trocável estava disponível para ser absorvido pelos vegetais. Desta forma, a utilização da fração

trocável no cálculo do FT deveria expressar mais realisticamente a capacidade de absorção da planta⁽⁸⁾.

Neste trabalho, adotou-se o rádio trocável como valor para determinar o FT do solo para planta, pois o mesmo reflete melhor a quantidade do cátion que se encontra disponível para ser absorvido pela planta. Apesar de serem encontrados dados na literatura que citam apenas urânio total⁽⁹¹⁾ para o cálculo do FT, usou-se o valor do urânio trocável, partindo do princípio de que a planta somente absorve os cátions que estejam disponíveis.

Os fatores de transferência foram calculados usando-se a concentração da primeira profundidade para as amostras de cereais, leguminosas, tubérculos e raízes; a concentração média das três profundidades foi usada para calcular o FT nas plantas de raízes profundas como é o caso do cajueiro e mangueira. A mangueira tem grande habilidade em explorar um maior volume de solo para satisfazer a sua demanda nutricional⁽⁹³⁾. A profundidade de suas raízes variam de 2 a 6 m dependendo do tipo de solo, o cajueiro apresenta comportamento semelhante. No caso da bananeira, como a maior percentagem das raízes se encontra nos primeiros 40 cm de profundidade⁽⁹⁴⁾, o cálculo do FT foi realizado com base na primeira profundidade. A Tabela 7 apresenta os FTs do urânio e ²²⁶Ra para as culturas.

Os valores dos FTs da Tabela 7 apresentam uma larga faixa

Tabela 7. Fator de transferência para urânio e ^{226}Ra em diferentes espécies de acordo com o local de cultivo

LOCALIZAÇÃO	CULTURAS	FT (10^{-2} kg seco/kg úmido)	
		URÂNIO	^{226}Ra
S-01	Banana-01	2,0	1,2
S-02	Inhame-02	4,3	2,9
	Macaxeira-02	3,9	0,6
	Batata-doce-02	9,0	1,5
S-03	Banana-03	1,6	2,4
S-04	Macaxeira-04	28,8	5,6
	Inhame-04	13,6	5,1
S-05	Cará-05	11,3	1,7
S-06	Macaxeira-06	1,4	3,4
S-07	Banana-07a	5,4	5,8
	Banana-07b	4,5	10,1
	Manga-07	3,8	2,6
S-08	Feijão-08	24,0	21,9
S-09	Macaxeira-09	13,3	2,7
S-10	Milho-10	1,1	2,2
S-11	Cajú-11	15,1	1,3
S-12	Batata-doce-12 ^(a)	-	-
S-13	Batata-doce-13	5,8	3,3
	Milho-13	4,8	1,7
S-14 A	Macaxeira-14A	11,4	3,6
	Inhame-14A	11,4	3,0

LOCALIZAÇÃO	CULTURAS	FT (10^{-2} kg seco/kg úmido)	
		URÂNIO	^{226}Ra
S-14 B	Milho-14B	3,3	3,2
	Inhame-14B	3,3	3,2
	Batata-doce-14B ^(a)	-	-
S-15	Macaxeira-15	0,5	6,1
S-16	Macaxeira-16	12,4	2,5
S-17	Macaxeira-17	3,2	4,2
	Inhame-17	8,1	1,0
S-18	Banana-18	7,3	0,8
	Batata-doce-18	2,5	3,5
S-19	Feijão-19a	30,4	35,3
	Feijão-19b	29,6	34,7
S-20	Banana-20	1,5	0,6
S-21	Feijão-21	19,1	6,5
S-22	Banana-22 ^(a)	-	-
S-23	Cajú-23	4,8	0,5
S-24	Macaxeira-24 ^(a)	-	-
S-25	Batata-doce-24 ^(a)	-	-
S-26	Manga-26	2,2	2,5
S-27	Cajú-27	3,9	1,3
S-28	Manga-28	2,8	0,6

Nota: (a) o solo correspondente não foi coletado.

de variação em um mesmo tipo de amostra, deixando evidente a possibilidade da existência de fatores que devem influenciar esse comportamento. As variações mais acentuadas são encontradas entre os FTs para mandioca e feijão; enquanto as menores variações estão nos FTs para o cajú em termos de ^{226}Ra e em termos de urânio para o milho.

Com base na Tabela 7, os FTs mais elevados tanto para urânio quanto para ^{226}Ra foram encontrados nas amostras de feijão, ficando claro, nesse caso, que essa cultura apresenta uma maior tendência de acumulação desses radionuclídeos. Em contrapartida, as menores transferências de urânio foram encontradas na mandioca e de ^{226}Ra no cajú. Verifica-se que apesar da baixa concentração de urânio em relação ao ^{226}Ra nas culturas mostradas na Tabela 3, os FTs nos dois casos encontram-se na mesma faixa de variação (Figura 20), demonstrando que os dois radionuclídeos competem igualmente para serem absorvidos pelas plantas.

Os FTs médios para ^{226}Ra apresentaram o valor mais elevado no feijão ($30,6 \times 10^{-2}$), enquanto o valor mais baixo foi no cajú ($1,0 \times 10^{-2}$). Para urânio os FTs médios forneceram um máximo de $25,8 \times 10^{-2}$ para feijão e mínimo de $2,9 \times 10^{-2}$ para a manga.

A grande faixa obtida para os valores de FTs pode ser explicada pelas diferenças na disponibilidade dos radionuclídeos no solo. Com base no coeficiente Kolmogorov-smirnov⁽⁶⁸⁾ (p), os FTs de

urânio e ^{226}Ra seguem uma distribuição lognormal e os gráficos dessas distribuições estão nas Figuras 25a e 25b.

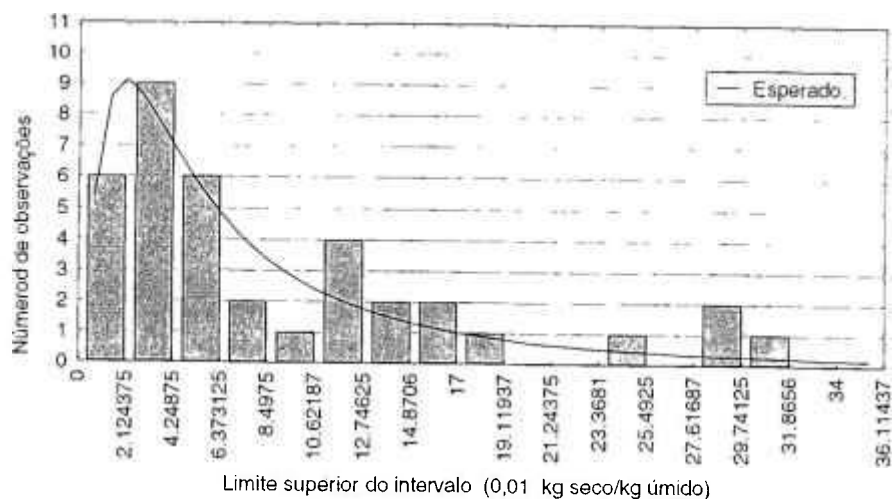


Figura 25a. Distribuição lognormal dos FTs do urânio nos cultivares

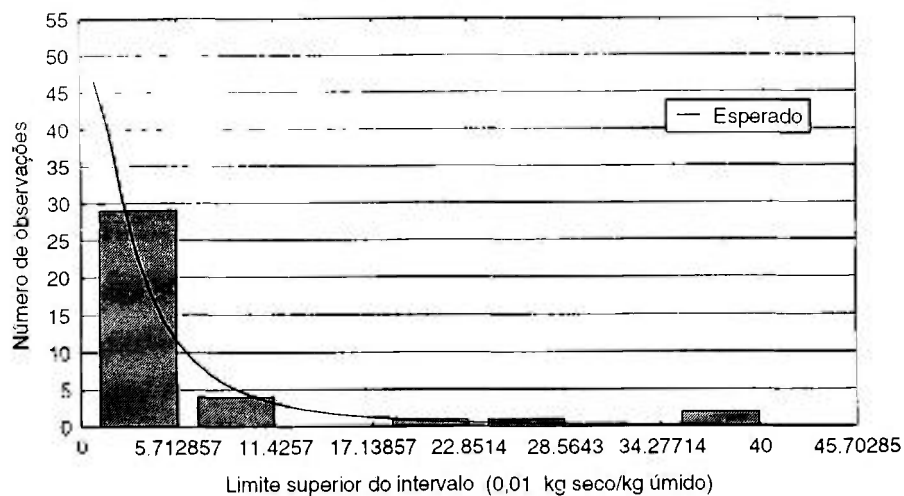


Figura 25. Distribuição lognormal dos FTs do ^{226}Ra nos cultivares

Os FTs de radionuclídeos naturais do solo para produtos agrícolas apresentados na literatura^(8,9,11,12,18,90) são vistos na Tabela 8. Através desta tabela verifica-se que os FTs obtidos para ²²⁶Ra na região de estudo são da mesma ordem de grandeza dos encontrados por Vasconcellos et al.⁽⁸⁾ na região do Planalto de Poços de Caldas; vale salientar que nesta referência foi usada a concentração trocável para cálculo do FT. Enquanto que em relação à referência (9), os valores dos FTs deste trabalho são uma ordem de grandeza superiores quando se referem ao peso úmido, entretanto, para o feijão (peso de cinzas) eles são duas ordens de grandeza superiores. No caso de frutas da referência (90) esses valores são da mesma ordem de grandeza dos encontrados no presente trabalho.

Com base na literatura, foram determinados alguns fatores que poderiam influenciar a transferência de nuclídeos do solo para as culturas. Na Tabela 9 estão apresentados os valores de concentração de matéria orgânica, Ca⁺² e K⁺ trocáveis e do pH das amostras de solo correspondentes a cada cultura. Não foram feitas análises de solo das culturas de raízes profundas.

Para verificar as possíveis influências de alguns cátions trocáveis (Ca²⁺ e K⁺), da matéria orgânica e do pH do solo na transferência de urânio e ²²⁶Ra para os cultivares, foi realizada uma série de testes. As relações entre as seguintes variáveis foram estudadas:

a) FT do rádio em algumas culturas e a quantidade de Ca⁺² e K⁺

Tabela 8. Comparação de resultados deste trabalho com os encontrados na literatura

CULTURAS	REFE- RÊNCIA	FT (10^{-3} kg seco/kg úmido)			
		URÂNIO		^{226}Ra	
		MÉDIA	INTERVALO	MÉDIA	INTERVALO
RAÍZES VEGETAIS	(11)	0,31	0,08-1,2	3,3	1,8-5,7
CEREAIS		0,10	0,03-0,4	0,81	0,19-3,8
FEIJÃO		0,60	0,15-2,4	4,0	1,0-16
FEIJÃO	(8)	-	-	47,0	16-170
MILHO		-	-	12,0	1,9-20,0
VEGETAIS	(18)	-	-	-	1,0-40
FRUTAS		-	-	-	0,5-11
CEREAIS		-	-	-	14-18
17 TIPOS	(12)	1,06	-	0,075	-
FEIJÃO	(9)	-	-	6,0	-
BATATA		-	-	1,0	-
CENOURA		-	-	4,0	-
FEIJÃO ^(a)		-	-	-	7,0-26,0
BATATA ^(a)		-	-	29,0	-
MILHO ^(a)		-	-	36,0	-
FRUTAS ^(a)	(90)	-	7,0-17,0	-	-
BATATA-DOCE ^(a)		-	15,0-51,0	-	-

CULTURAS	REFE- RÊNCIA	FT (10 ⁻³ kg seco/kg úmido)			
		URÂNIO		²²⁶ Ra	
		MÉDIA	INTERVALO	MÉDIA	INTERVALO
BATATA-DOCE ^(a)	(b)	-	-	-	24,0-67,0
FRUTAS ^(a)		-	-	-	0,3-8,0
BATATA-DOCE		57,7	25-90	27,7	15-35
FRUTAS		45,7	15-73	24,8	5-101
FEIJÃO		257,7	191-304	246	65-353
MILHO		-	-	23,7	17-32

Nota:

1. A referência (8) adotou o rádio trocável e usou a média aritmética;
2. A referência (11) adotou o rádio total e usou a média geométrica para os cálculos;
3. A referência (12) usou a concentração total e adotou a média geométrica de 17 tipos de culturas, entre eles, batata, milho e feijão;
4. (a) Corresponde a peso de cinzas;
5. A referência (9) apresenta valores para as plantas em termos de peso úmido e em peso de cinzas e;
6. (b) corresponde a este trabalho.

Tabela 9. Quantidade de matéria orgânica, cátions trocáveis e pH na primeira profundidade (40 cm) de alguns solos

SOLO	MATÉRIA ORGÂNICA (%)	pH	CÁTIONS TROCÁVEIS (ppm)	
			Ca ²⁺	K ⁺
S-01/04	7,61	6,35	294,6	11,52
S-02/04	3,79	3,50	24,2	2,66
S-03/04	6,34	4,69	140,6	9,48
S-04/04	6,01	4,55	68,8	2,66
S-05/04	2,64	4,25	33,1	1,95
S-06/04	3,91	4,80	81,2	3,52
S-07/04	5,94	5,48	162,6	21,85
S-08/04	2,01	3,79	16,2	2,31
S-09/04	2,88	4,00	18,0	1,30
S-10/04	10,97	5,68	380,4	13,86
S-11/04	5,68	4,80	53,9	2,46
S-12/04 ^(a)	-	-	-	-
S-13/04	3,21	4,32	34,4	1,38
S-14/04A	2,02	4,77	49,4	1,95
S-14/04B	3,42	4,22	64,1	2,11
S-15/04	5,35	4,01	45,5	5,13
S-16/04	4,11	5,85	135,2	3,01
S-17/04	3,46	4,98	54,8	6,78

SOLO	MATÉRIA ORGÂNICA (%)	pH	CÁTIONS TROCÁVEIS (ppm)	
			Ca ⁺²	K ⁺
S-18/04	4,37	5,30	96,2	6,18
S-19/04	2,74	4,32	31,7	2,84
S-20/04	2,57	5,30	76,8	5,64
S-21/04	2,01	5,14	47,2	1,85

Nota: (a) não foi possível coletar o solo.

trocáveis no solo (Figuras 26a, 26b, 26c e 26d);

b) FT do urânio em algumas culturas e a quantidade de Ca⁺² e K⁺ trocáveis no solo (Figuras 27a, 27b, 27c e 27d);

c) FT do urânio e quantidade de matéria orgânica no solo (Figuras 28a e 28b);

d) FT do rádio e a quantidade de matéria orgânica no solo (Figuras 29a e 29b);

e) FT de urânio e rádio para as culturas em geral e a quantidade de Ca⁺² e K⁺ trocáveis (Figuras 30a, 30b, 30c e 30d) e;

f) pH e FT do urânio e rádio nas culturas (Figuras 31a, 31b, 31c e 31d).

Analisando a possibilidade do Ca⁺² e K⁺ trocáveis influenciarem a transferência do ²²⁶Ra para os tubérculos e raízes, observou-se que não existe qualquer interferência desses cátions,

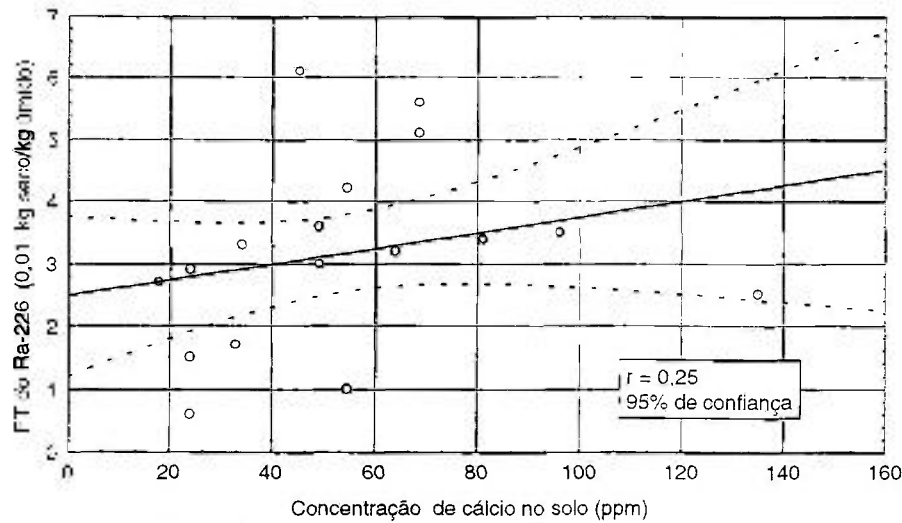


Figura 26a- Correlação entre cálcio trocável e os FTs do Ra-226 em tubérculos e raízes.

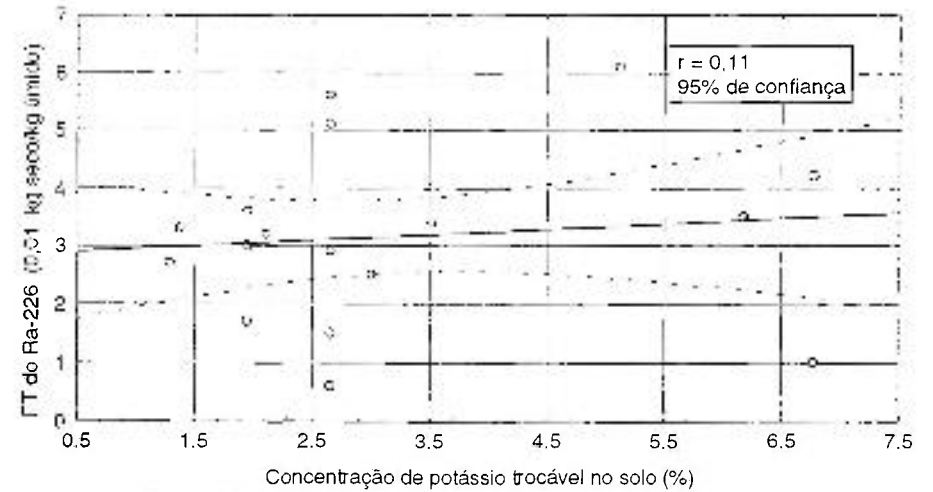


Figura 26b. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do Ra-226 em tubérculos e raízes.

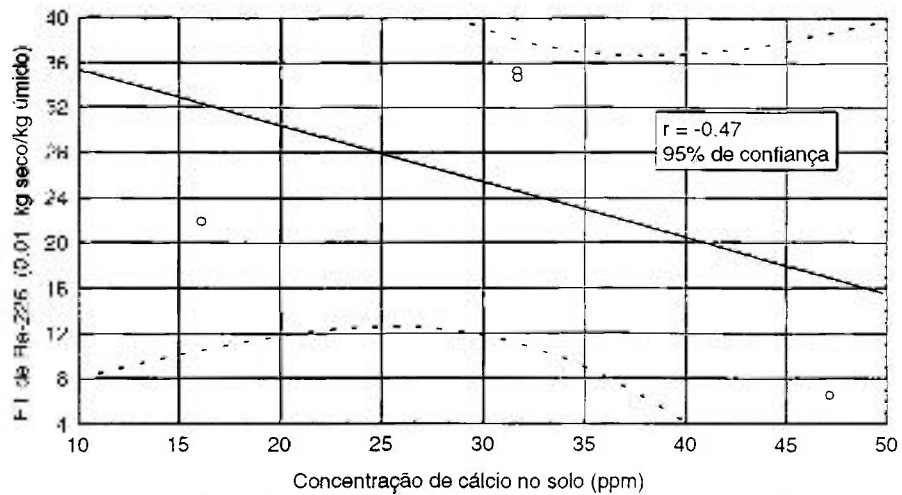


Figura 26c: Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do Ra-226 no feijão

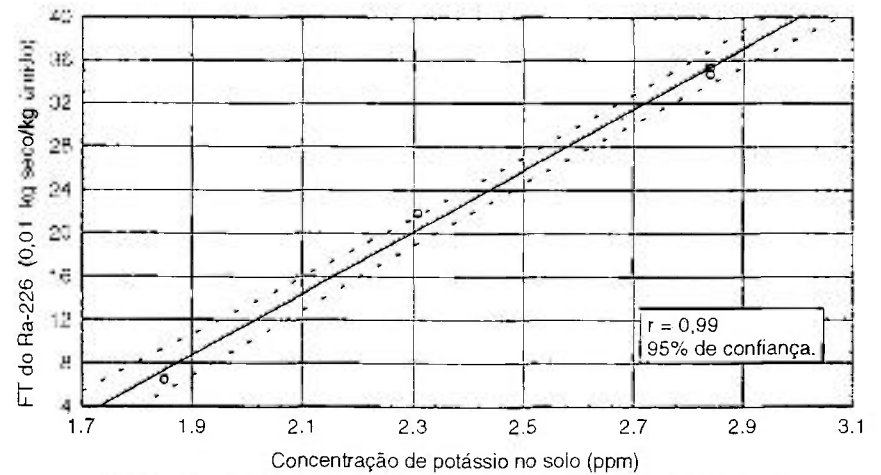


Figura 26d. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do Ra-226 no feijão

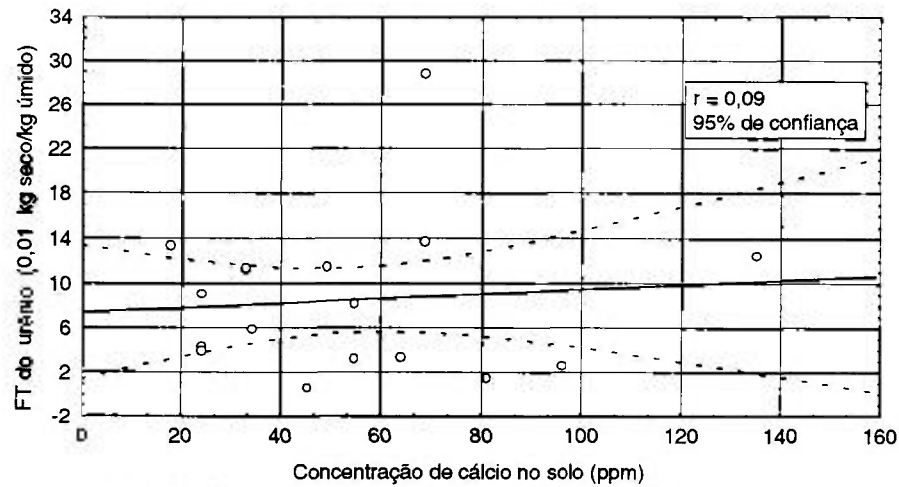


Figura 27a. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do urânio em tubérculos e raízes

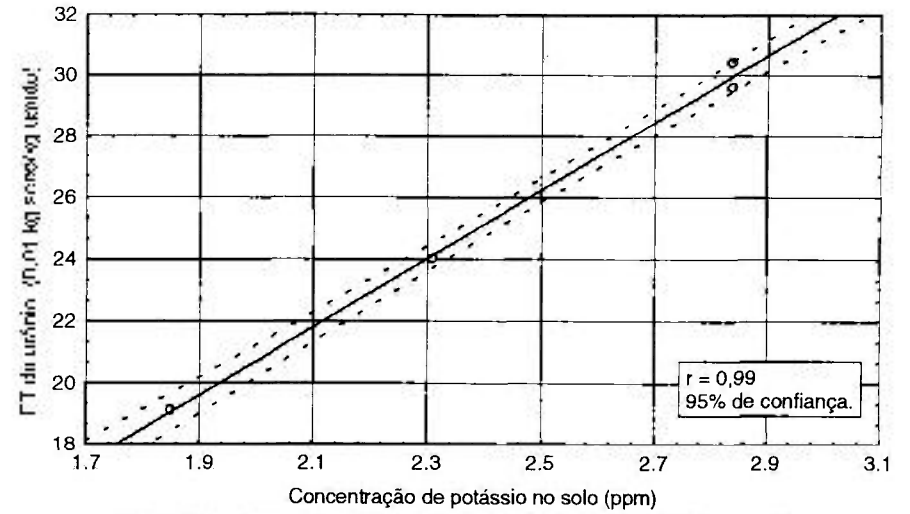


Figura 27b. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do urânio no feijão

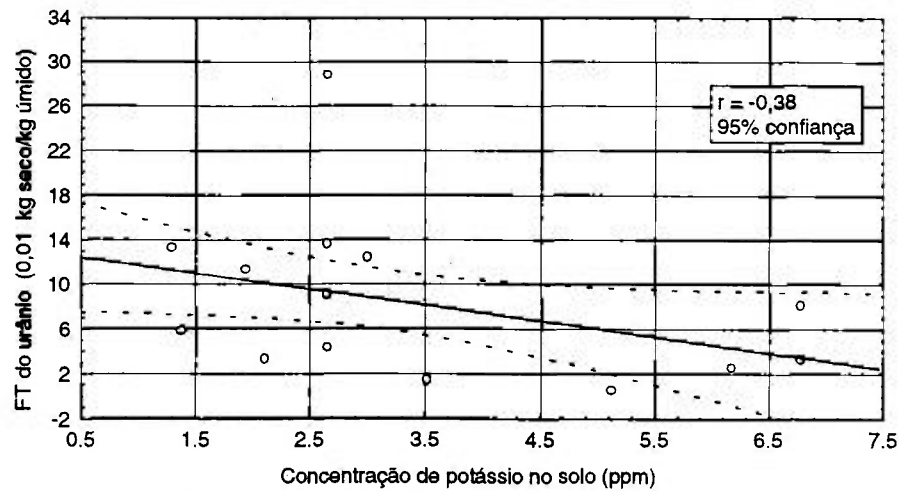


Figura 27c. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do urânio em tubérculos e raízes

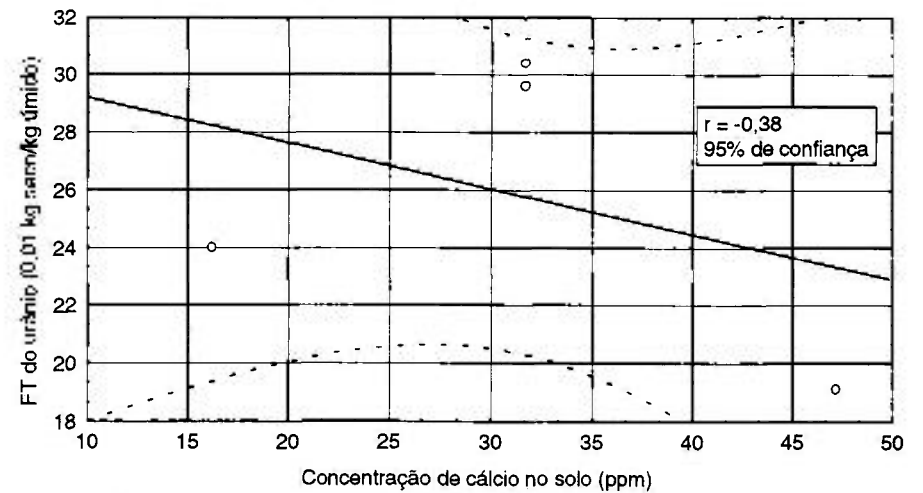


Figura 27d. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do urânio no feijão

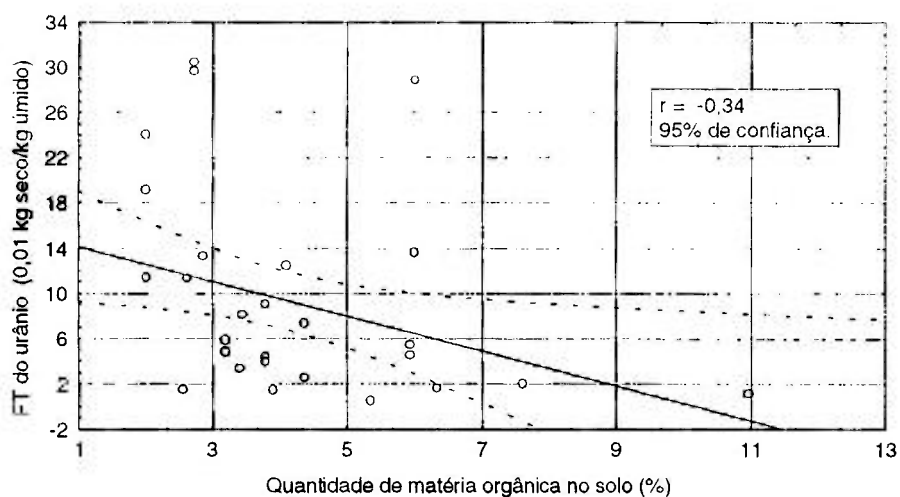


Figura 28a. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do urânio nos cultivares

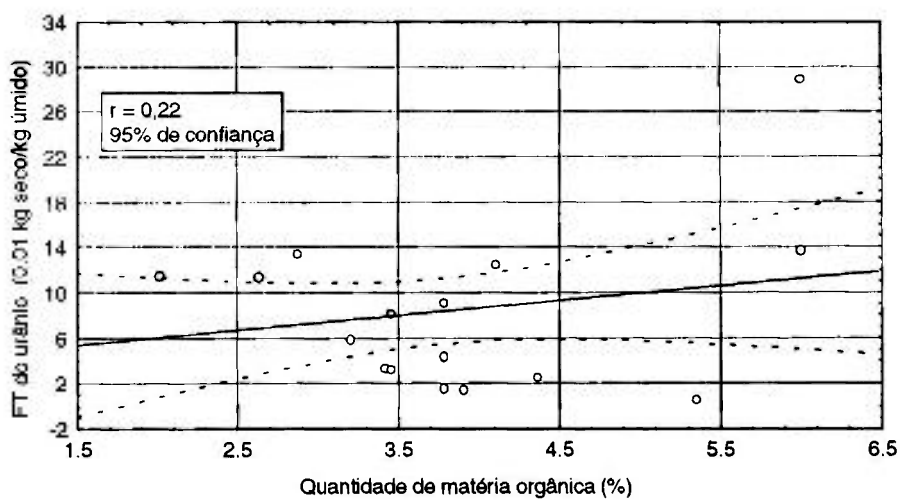


Figura 28b. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do urânio em tubérculos e raízes

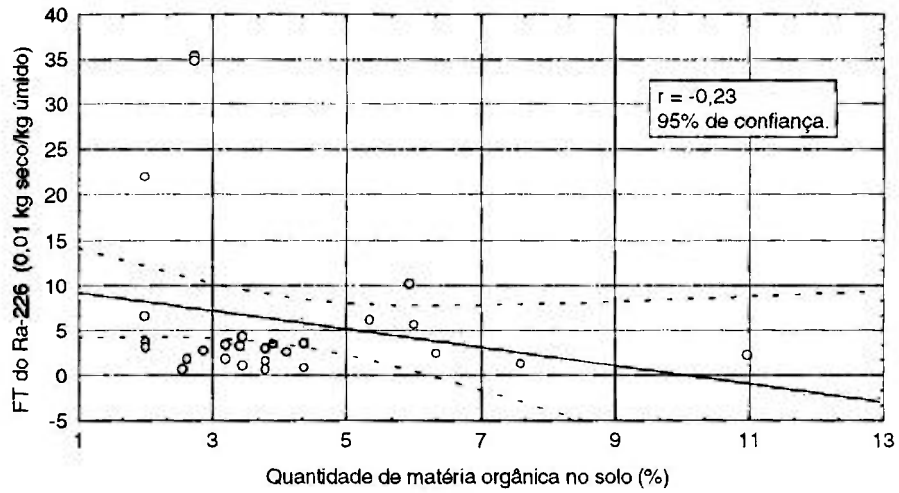


Figura 29a. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do ^{226}Ra nos cultivares

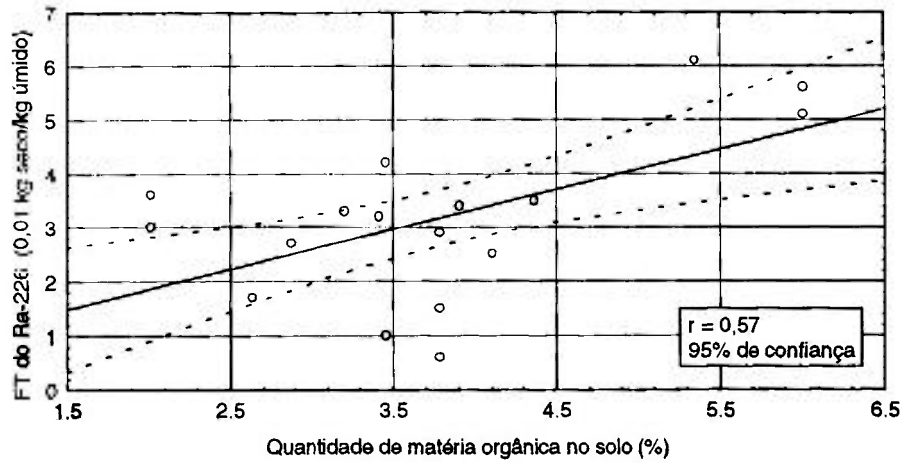


Figura 29b. Correlação entre matéria orgânica e os FTs do ^{226}Ra em tubérculos e raízes

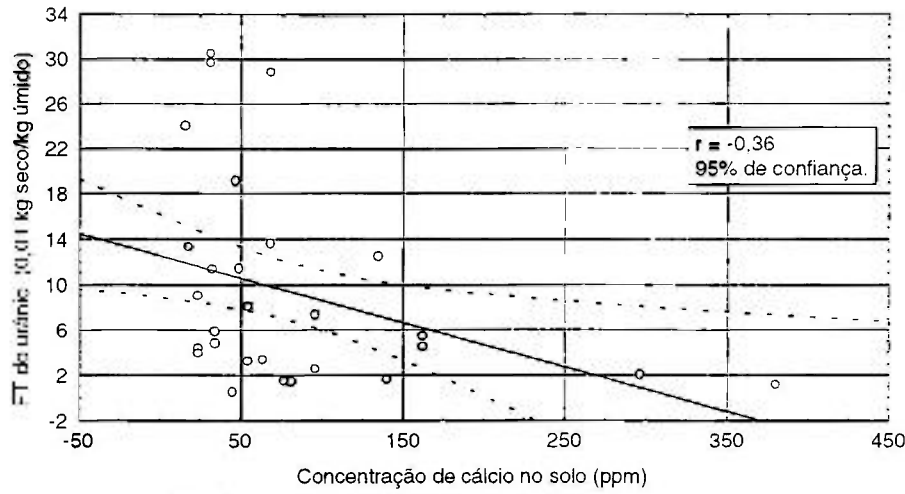


Figura 30a. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do urânio nos cultivares

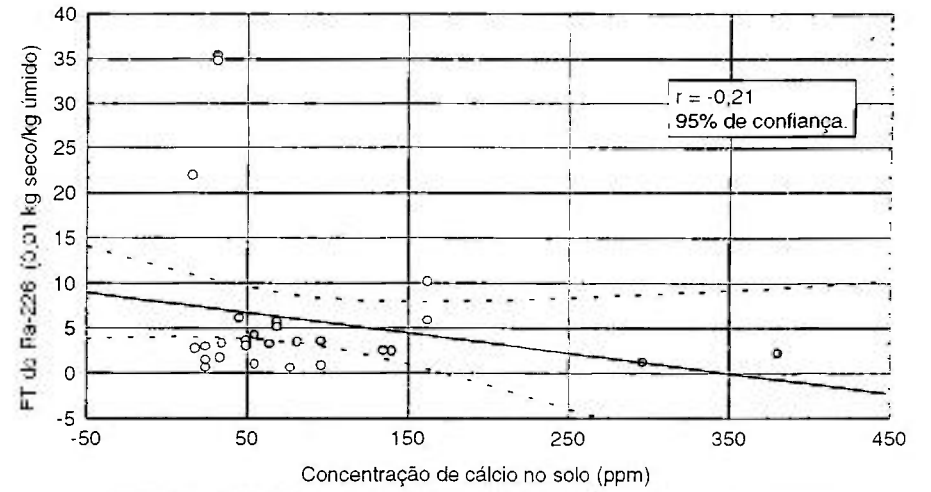


Figura 30b. Correlação entre o cálcio trocável e os FTs do Ra-226 nos cultivares

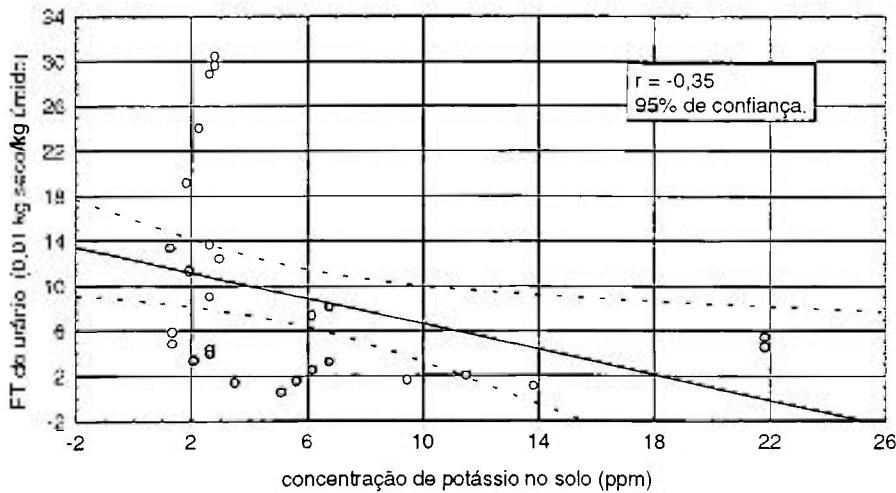


Figura 30c. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do urânio nos cultivares

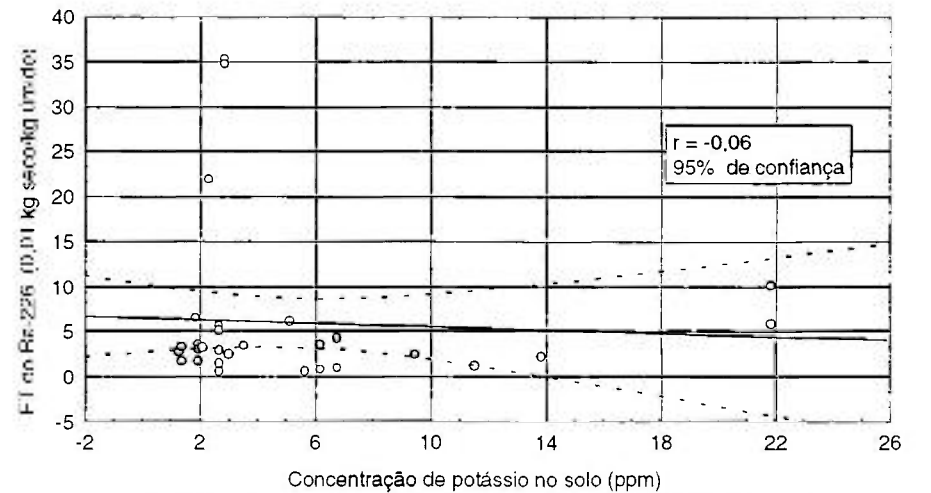


Figura 30d. Correlação entre o potássio trocável e os FTs do Ra-226 nos cultivares

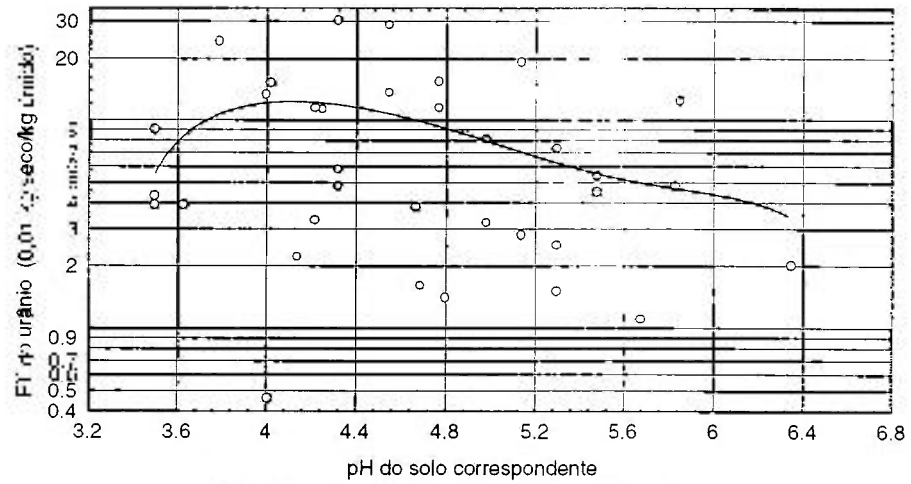


Figura 31a. FTs do urânio nos cultivares em função do pH

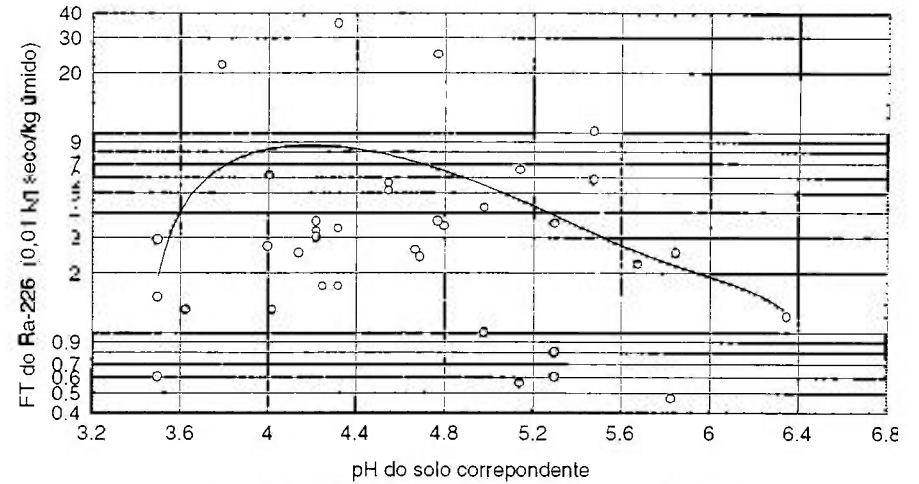


Figura 31b. FTs do Ra-226 nos cultivares em função do pH

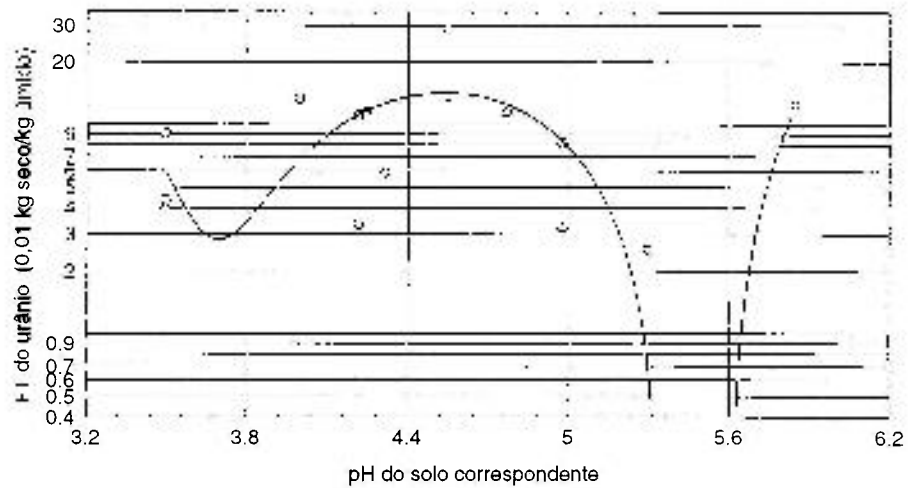


Figura 31c. FTs do urânio em tubérculos e raízes em função do pH

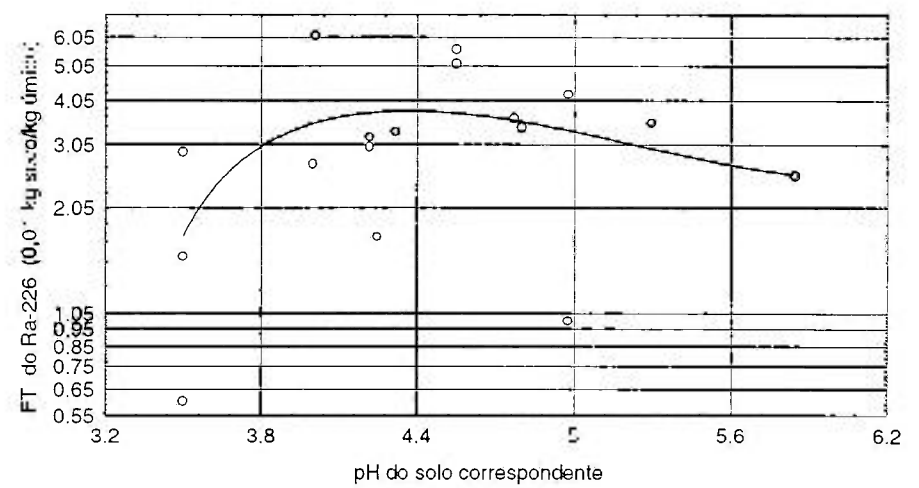


Figura 31d. FT do Ra-226 em tubérculos em função do pH

como pode ser verificado nas Figuras 26a e 26b. Também não se identificou correlação entre o Ca^{2+} e a transferência do ^{226}Ra para o feijão (Figura 26c), porém verificou-se uma boa correlação entre o K^+ e a transferência do ^{226}Ra para essa cultura (Figura 26d), embora o número de amostras analisadas fosse pequeno. Comportamento semelhante ao descrito anteriormente ocorreu com relação à transferência do urânio para os mesmos tipos de culturas como pode ser comprovado pelas Figuras 27a, 27b, 27c e 27d.

Verificou-se que não existe correlação entre matéria orgânica e urânio nas culturas em geral ou em um grupo específico (tubérculos e raízes), da mesma forma não foi encontrada correlação entre a matéria orgânica e o ^{226}Ra nas culturas ou isoladamente nos tubérculos e raízes, o que pode ser verificado por intermédio das Figuras 28a e 28b e Figuras 29a e 29b.

As Figuras 30a, 30b, 30c e 30d mostram que, em geral, existe uma fraca correlação negativa entre as concentrações de Ca^{+2} e K^+ trocáveis e a transferência de urânio e ^{226}Ra para os cultivares. Por outro lado, usando um ajuste polinomial⁽⁹⁵⁾, verificou-se, por intermédio das Figuras 31a, 31b, 31c e 31d, que existe uma razoável influência do pH na transferência de urânio e ^{226}Ra do solo para as culturas. Isto se torna evidente pelo comportamento da curva na faixa de pH em torno de 4,0 a 4,4 (Figuras 31a e 31b). De modo geral, não foi encontrada influência de cátions trocáveis (Ca^{+2} e K^+) ou de matéria orgânica na

transferência dos radionuclídeos do solo para os produtos agrícolas cultivados na região da fosforita de Pernambuco.

Lima e Penna-Franca⁽⁶⁾ encontraram uma influência predominante de parâmetros físico-químicos bem como da distribuição geoquímica dos solos analisados sobre as concentrações de ²²⁶Ra do Planalto de Poços de Caldas. Por outro lado, Amaral et al.⁽⁹²⁾ analisando resultados das três principais fazendas do mesmo planalto não encontraram correlação estatisticamente significativa entre a fração de rádio trocável e os diversos parâmetros físico-químicos do solo dessa mesma região. Porém, vale salientar que no primeiro caso foi considerado apenas o ²²⁶Ra trocável, enquanto que no segundo foi considerado o rádio total. Marple⁽⁹⁶⁾ também não encontrou relação direta entre a atividade na planta e no solo. Já Bettencourt⁽⁸⁰⁾ obteve medidas em dezoito localidades para avaliar a extensão da contaminação devida à dispersão em torno de uma instalação de extração de sais de rádio, não encontrando correlação significativa entre os valores individuais obtidos para os FTs e o cálcio trocável ou o teor de matéria orgânica no solo de cada localidade. Porém observou uma boa correlação ($r=0,95$) entre a média geométrica dos FTs para ²²⁶Ra e o cálcio trocável no solo entre as localidades, verificando que os FTs de rádio aumentam quando diminui a concentração do rádio no solo.

Baseado em testes obtidos na Silésia Superior, Lebecka et al.⁽⁹⁷⁾ concluíram que a transferência de rádio do solo para a planta

depende basicamente da acidez do solo. Isto foi confirmado por Dulewski⁽⁹⁸⁾ que analisou as cinzas de rejeitos de uma usina de potência à base de carvão mineral utilizada para adubação. Segundo eles, as plantas absorvem rádio em mais alta taxa se a transferência ocorre em solo ácido. Também observaram que as plantas com alta concentração de rádio contêm pouca concentração de ^{40}K (abaixo de 50 Bq/kg); entretanto, a concentração de ^{40}K em plantas não contaminadas com rádio apresentam valores acima de 100 Bq/kg. Nesse caso, o ^{40}K funciona como um indicador do potássio total, porém eles não fizeram referência aos níveis de K^+ e ^{226}Ra trocáveis no solo. No presente trabalho também encontrou-se maior transferência de rádio em determinada faixa de pH como foi mostrado anteriormente; entretanto, não foi encontrada influência de K^+ em relação à transferência de rádio para os cultivares em geral ou para os três grupos analisados.

5.5. INGESTÃO E AVALIAÇÃO DA DOSE

Os dados que definiram a quantidade de alimentos consumidos "per capita" por dia foram obtidos em visita aos moradores rurais e com base em dados representativos para a população da região metropolitana de Recife, fornecidos pelo IBGE⁽⁸²⁾, os quais foram apresentados na Tabela 2.

A estimativa de ingestão diária de urânio e ^{226}Ra provenientes dos alimentos consumidos pela população da região

fosfática pernambucana (residentes rurais e população em geral) foi obtida combinando os dados das Tabelas 2 e 3. Dessa forma encontrou-se que a ingestão diária para os residentes rurais é de 0,82 μg (0,55 pCi) de urânio e de 190,0 mBq (5,14 pCi) para ^{226}Ra , enquanto que, para a população dos municípios da região é de 0,21 μg (0,13 pCi) de urânio e de 43,4 mBq (1,17 pCi) de ^{226}Ra . A Tabela 10 fornece valores de ingestão diária de urânio e ^{226}Ra em algumas localidades do planeta. Esses valores para urânio são da mesma ordem de grandeza dos resultados obtidos para residentes rurais da região fosfática pernambucana, enquanto que o ^{226}Ra apresenta resultados ligeiramente inferiores. Deve-se levar em consideração o fato de que os valores de ingestão dessas referências se referem à quase totalidade da dieta diária.

As doses para o órgão crítico e corpo inteiro, resultantes da ingestão de urânio e ^{226}Ra , são apresentadas na Tabela 11. Esses resultados foram obtidos pela combinação das concentrações médias dos radionuclídeos da Tabela 4, média anual de consumo alimentar "per capita" da população da região de estudo (Tabela 2), utilizando a equação (2) e aplicando os fatores de conversão de dose⁽⁹⁹⁾.

Em levantamentos para detectar possíveis alterações ambientais devido aos trabalhos de prospecção, escavação e tratamento do minério de urânio de uma mina do Planalto de Poços de Caldas, verificou-se que os vegetais produzidos na região são uma

Tabela 10. Valores de ingestão diária de urânio e ^{226}Ra em algumas localidades do planeta

ORIGEM	ÍTEM	RADIONUCLÍDEO	
		URÂNIO ($\mu\text{g}/\text{d}$)	^{226}Ra (pCi/d)
EUROPA ⁽¹⁹⁾	DIETA	0,99	-
REINO UNIDO ⁽¹⁹⁾	CESTA BÁSICA	0,82	-
ÍNDIA ⁽¹⁸⁾	DIETA ^(a)	-	3,8
FLÓRIDA ⁽¹⁸⁾	FRUTAS E VEGETAIS	-	1,5
TENNESSEE ⁽¹⁸⁾	FRUTAS E VEGETAIS	-	0,94
NOVA YORK ⁽⁸¹⁾	DIETA ^(b)	-	1,6
NOVA YORK ⁽⁴²⁾	DIETA	1,3	-
JAPÃO ⁽⁴²⁾	DIETA	1,5	-
REINO UNIDO ⁽⁴²⁾	DIETA	1,0	-

Nota: a) todos os alimentos sólidos;

b) inclui a concentração no leite e exclui a água potável.

Tabela 11. Dose para o órgão crítico e corpo inteiro

RADIONUCLÍDEO	DOSE (mSv/ano)	
	SUPERFÍCIE DO OSSO	CORPO INTEIRO
URÂNIO	$1,1 \times 10^{-3}$	$1,6 \times 10^{-4}$
^{226}Ra	$5,2 \times 10^{-1}$	$2,7 \times 10^{-2}$

importante via de transferência para o homem⁽¹⁰⁰⁾, como pode ser constatado pela dose efetiva comprometida devida à ingestão desses vegetais, a qual variou de $3,5 \times 10^{-2}$ a $1,9 \times 10^{-1}$ mSv/a para ^{226}Ra , e de $1,2 \times 10^{-2}$ a $3,5 \times 10^{-1}$ mSv/a para o ^{238}U . Esses valores são referentes a três diferentes micro-regiões de amostragem. Em outro trabalho⁽¹¹⁾, a estimativa de dose efetiva média por ano de exposição a vários radionuclídeos naturais, para o grupo adulto da população rural do mesmo local, foi de 0,12 mSv/ano. A estimativa devida apenas à ingestão de produtos de origem vegetal (vegetais folhosos e não folhosos, batata, raízes, cereais e feijão), cultivados no local, foi de $8,7 \times 10^{-2}$ mSv/ano.

A dose efetiva estimada para a população rural da região fosfática pernambucana é semelhante à encontrada por Amaral⁽¹¹⁾ quando avaliou a ingestão de produtos cultivados no Planalto de Poços de Caldas. O mesmo ocorre com os valores apresentados por Watson et al.⁽¹⁸⁾, para um adulto médio exposto a uma dieta de

alimentos produzidos em uma região fosfática do sudoeste da Flórida, na Índia e no Tennessee, cujos valores apresentados foram $1,9 \times 10^{-2}$, $4,7 \times 10^{-2}$ e $1,2 \times 10^{-2}$ mSv/ano, respectivamente. Em localidade próxima a uma mina de urânio no Canadá⁽¹²⁾, o consumo de produtos de hortas provocaram doses equivalentes comprometidas para a superfície do osso na faixa de 0,18 a 0,68 mSv/ano; esses valores são da mesma ordem de grandeza dos encontrados na região fosfática pernambucana.

5.6. ESTIMATIVA DE RISCO

Observando que o órgão crítico (superfície do osso) é o mesmo para urânio e ^{226}Ra , e que a dose provocada pelo ^{226}Ra é 2 ordens de grandeza superior à do urânio e que várias autoridades reconhecidas, incluindo a "EPA's Science Advisory Board", recomendam que a regulamentação do urânio seja baseada na toxicidade química e não na carcinogenicidade^(20,101), a estimativa de risco foi avaliada somente para ^{226}Ra .

Com base nos dados de ingestão diária de ^{226}Ra apresentado no item anterior, calculou-se a estimativa de risco de indução de sarcomas de osso e carcinomas de crânio na população rural da área delimitada para estudo.

5.6.1. CARCINOMA DE CRÂNIO

A quantidade de ^{226}Ra transferida para o sangue durante 55 anos é obtida usando a equação (6) e o valor encontrado foi de 800,99 Bq. Assim a taxa de risco até o fim da vida será de $0,344 \times 10^{-6}/\text{ano}$, fornecendo um risco médio de $0,172 \times 10^{-6}/\text{ano}$. Com base nesses dados o risco acumulado de carcinoma em 1 milhão de pessoas foi de 10, contra 375 esperados naturalmente.

5.6.2. SARCOMA DE OSSO

Para o cálculo do risco acumulado de sarcoma, a transferência acumulada de ^{226}Ra para o sangue em um período de 60 anos foi determinada usando a equação (12). Essa transferência acumulada foi de 873,81 Bq. A taxa de risco de indução de sarcoma até o fim da vida é então calculada pela equação (11), a qual fornece um valor de $0,235 \times 10^{-6}/\text{ano}$; dessa forma, o risco médio foi de $0,117 \times 10^{-6}/\text{ano}$. De posse desse valor foi calculado o risco acumulado usando a equação (14) e o valor encontrado foi de 8 sarcomas em 1 milhão de pessoas, enquanto são esperados naturalmente cerca de 750 casos.

Capítulo VI

CONCLUSÕES

De acordo com os resultados obtidos no presente trabalho, chegou-se às seguintes conclusões:

1. As medidas das concentrações de ^{226}Ra nos cultivares da região fosfática pernambucana apresentaram uma larga faixa de resultados (43 a 2.209 mBq/kg), enquanto que, para o urânio, essa faixa foi mais reduzida (13 a 186 mBq/kg).
2. Não foi encontrada predominância de absorção dos radionuclídeos por nenhuma cultura.
3. As concentrações médias de urânio e ^{226}Ra nas culturas da área de estudo são da mesma ordem de grandeza das encontradas no Planalto de Poços de Caldas.
4. Os resultados obtidos para as concentrações de urânio e ^{226}Ra nos alimentos e solos da área de estudo são relevantes porque formam um banco de dados para futuras avaliações, tendo em vista que a reserva fosfática é economicamente viável para exploração mineral.

5. As concentrações de urânio e ^{226}Ra trocáveis no solo apresentaram uma grande faixa de variação nos diferentes pontos de coleta, de 0,1 a 11,5 e de 2,2 a 43,7 Bq/kg, respectivamente. Em todos os solos analisados, o rádio se encontra mais disponível do que o urânio.

6. As concentrações médias de urânio e ^{226}Ra totais no solo da região fosfática pernambucana são da mesma ordem de grandeza das encontradas em áreas de radioatividade natural elevada. As faixas de variação foram de 15 a 300 e de 14 a 240 Bq/kg, respectivamente.

7. Os valores encontrados para os fatores de transferência de urânio e ^{226}Ra calculados a partir da concentração dos radionuclídeos disponíveis no solo são da mesma ordem de grandeza, apresentando faixa de variação de $0,5 \times 10^{-2}$ a 30×10^{-2} kg seco/kg úmido e de $0,5 \times 10^{-2}$ a 35×10^{-2} kg seco/kg úmido, respectivamente. Isso demonstra que esses radionuclídeos, provavelmente, competem igualmente para serem absorvidos pelas culturas regionais.

8. Não foi encontrada correlação significativa entre Ca^{2+} , K^+ e matéria orgânica presentes no solo e a transferência de urânio e ^{226}Ra do solo para os cultivares. Entretanto, observou-se que em determinada faixa de pH (4,0 a 4,4) existe uma maior tendência de absorção desses radionuclídeos.

9. A absorção do urânio e rádio pelas plantas cultivadas na região pode ser uma via crítica de transferência desses radionuclídeos na cadeia alimentar.

10. O valor encontrado neste trabalho para a dose efetiva devida à ingestão de urânio e ^{226}Ra , nos gêneros alimentícios, foi de $1,6 \times 10^{-4}$ e $2,7 \times 10^{-2}$ mSv/ano, respectivamente. Esses resultados são da mesma ordem de grandeza dos valores encontrados para regiões de radiação natural elevada no Brasil.

11. A dose efetiva estimada para os residentes rurais da área de estudo devido aos itens da dieta avaliados é da mesma ordem de grandeza da encontrada por Amaral⁽¹¹⁾ no Planalto de Poços de Caldas e uma ordem de grandeza inferior à encontrada em um local que sofreu alteração provocada por trabalhos de mineração no mesmo planalto⁽¹⁰⁰⁾.

12. A ingestão de ^{226}Ra via alimentos levará a um acréscimo de incidência de carcinoma de crânio de aproximadamente 3%, enquanto que, a incidência de sarcoma de osso terá um acréscimo de 1%, para os residentes rurais da região fosfática.

13. Como a região é muito extensa (aproximadamente 150 km) sentiu-se a necessidade de pesquisar toda a costa pernambucana a fim de localizar pontos onde existem alterações provocadas pelo homem

(área extraída) para avaliar um possível impacto ambiental. Esta pesquisa será uma das possibilidades de dar continuidade ao presente trabalho.

14. É importante verificar a contribuição à exposição anual decorrente da inalação de ^{222}Rn e da irradiação externa para todos os residentes (rurais e urbanos) da região fosfática da costa nordestina.

15. Verificou-se que a contribuição do ^{226}Ra para a dose é mais importante do que a do urânio. Para continuidade dos trabalhos é importante, também, avaliar as concentrações de outros radionuclídeos tais como ^{210}Pb e ^{210}Po .

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. ALMEIDA, M. G. Estudo para o aproveitamento do urânio como sub-produto da fosforita do Nordeste do Brasil. São Paulo, 1978. (Dissertação de mestrado, Univ. São Paulo).
2. AMARAL, R. S. Determinação de urânio na Fosforita por meio de Medidas Radiométricas e Análise por Ativação. Recife, 1987. (Dissertação de Mestrado, Depart. de Energia Nuclear, UFPE).
3. COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR/Depart. Nacional de Produção Mineral. Projeto Recursos de Urânio nos Fosforitos do Nordeste. Relatório Técnico. 1985.
4. SAAD, S. Aspectos Econômicos do Aproveitamento do Urânio Associado aos Fosfatos do Nordeste. Boletim N° 7. Comissão Nac. de Energia Nuclear. 1974.
5. GONZALES, A. & ANDERER, J. Radiation versus radiation: Nuclear energia in perspective. A comparative analysis of radiation in the living environment. Inst. At. Energy Agency Bulletin, 2, 1989.
6. LIMA, V.T. & PENNA-FRANCA, E. Uptake of Endogenous and Exogenous ²²⁶Ra by Vegetables from Soils of a Highly Radioactive Region. Radiat. Prot. Dosim., 24(1/4):123-6, 1988.
7. NG, Y. C. A Review of Transfer Factors for Assessing the Dose from Radionuclides in Agricultural Products. Nucl. Saf.,

23(1), 1982.

8. VASCONCELLOS, L. M. H., AMARAL, E. C. S., VIANNA, M. E. & PENNA-FRANCA, E. Uptake of ^{226}Ra and ^{210}Pb by Food Crops Cultivated in a Region of High Natural Radioactivity in Brazil. J. Environ. Radioact., 5:287-302. 1987.
9. SIMON, S.L. & IBRAIM, S. A. Biological Uptake of Radium by Terrestrial Plants. THE ENVIRONMENTAL BEHAVIOUR OF RADIUM. N° 310, V. 1, Vienna, IAEA, 1990. (Technical Report Series)
10. SMITH, K. A. The uptake and translocation by plants of the alkaline earth elements calcium, strontium, barium and radium. 1967. (Ph.D. Thesis. Univ. of Reading).
11. AMARAL, E. C. S. Modificação da Exposição à Radiação Natural Devido a Atividades Agrícolas e Industriais numa Área de Radioatividade Natural Elevada no Brasil. Rio de Janeiro, 1992. (Tese de Doutorado, Univ. Fed. do Rio de Janeiro).
12. TRACY, B. L.; PRANTL, F. A. & QUINN, J. M. Transfer of ^{226}Ra , ^{210}Pb and Uranium from Soil to Garden Produce: Assessment of Risk. Health Phys., 44(5):469-477, 1983.
13. SEELMANN-EGGEBERT, W; PFENNIG, G. and MÜNDEL, H. Chart of the Nuclides. 4 ed. Alemanha. Institut fur Radiochemie. 1974.
14. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNITED NATIONS. SOURCES, EFFECTS AND RISKS OF IONIZING RADIATION. 1988. Report to the General Assembly, with annexes. New York.

15. GUIDELINES FOR SURFACE WATER QUALITY. Vol. 1. Inorganic Chemical Substances. Inland Waters Directorate. Water Quality Branch. Ottawa, Canada, 1993.
16. Dean, M. H. A survey of the uranium content of vegetation in Great Britain, J. Ecol., 54:589-595. 1986.
17. Borris, D. P., Lloyd, G. M., Nifing, G. D. and Robertson, D. J. Release of Radium and other Decay-series Isotopes from Florida Phosphate Rock. Florida Institute of Phosphate Research. Bartow. 1988.
18. Watson, A. P.; Etnier, E. L. and McDowell-Boyyer, L. M. Radium-226 in drinking water and terrestrial food chains: transfer parameters and normal exposure and dose. Nucl. Saf., 25(6):815-829. 1984.
19. Hamilton, E. L. The Concentration of Uranium in Man and His Diet. Health Phys., 22:149, 1972.
20. Wreen, McDonald E.; Durbin, P. W.; Howard, B.; Lipsztein, J; Rundo, J.; Still, E. T. & Willis D. L. METABOLISM OF INGESTED U AND Ra. Health Phys., 48(5):601-633, 1985.
21. Mercer et al. Absorption by plants of naturally occurring radioactive materials. Annual Report 1961-1962. Radiobiological Laboratory, Agricultural Research Council, Wantage, UK (1962) 82-92. (ARCL L-8).
22. Penna-Franca, E. Radioactivity of Brazil nuts. Health Phys., 14:95-9, 1968.

23. Fisenne, I. M. & Keller, H. W. Radium-226 in the diet of three United States cities. U. S. Atomic Energy Commission. 1969. (HASL - 207).
24. Bortoli, M. and Gaglione, P. Radium-226 in Environmental Materials and Foods. Health Phys., 22:43-8. 1979.
25. Burr, W. B. Human Experience and Epidemiology, Colloquium on Biokinetics and Analysis of Uranium in Man. Hanford Envir. Health Fdn., Richland, Wash. 1984. (HEHF-47, USUR-05).
26. Luessenhop, J. The Toxicity in Man of Hexavalent Uranium Following Intravenous Administration. Amer. J. Roentgenol., 79:83, 1958.
27. Mays, C. W.; Rowland, R. E.; Stehney, A. F. Cancer Risk From the Lifetime Intake of Ra and U Isotopes. Health Phys., 48(5):635-647, 1985.
28. Welford, G. A. & Baird, R. Uranium Levels in Human Diet and Biological Materials. Health Phys., 13:1321-4, 1967.
29. Malavolta, E. Elementos de Nutrição Mineral de Plantas. Editora Agronômica Ceres Ltda. São Paulo. 1980.
30. Lopatkina, A. P.; Komarov, V. S.; Sergejev, A. N. Brief communications on concentration of uranium by living and dead peat-forming plants. Geochem. Int., 7:277-282, 1970.
31. Smith, K. A. The comparative uptake and translocation by plants of calcium, strontium, barium, and radium. II. *Triticum Vulgare* (wheat). Plant and soil, 34:643-651. 1971.

32. Grzybwska, D. Uptake of ^{226}Ra by Plants from Contaminated Soils. Nukleonika, 19:71-8, 1974.
33. Whicker, F. W. and Schultz, V., Radioecology: Nuclear Energy and the environment. V. 1, Florida, CRC, 1982.
34. Wrenn, M. E. et al. The Potential Toxicity of Uranium in Water. J. Water Works Assoc, 74(4):177-84, 1987.
35. Muth, H. & Globel, B. Age dependent concentration of ^{226}Ra in human bone and some transfer factors from diet to human tissues. Health Phy., 44:113-121, 1983.
36. Wrenn, M. E. Internal Dose Estimates, In: INTERNATIONAL SYMP. ON AREAS OF HIGH NATURAL RADIOACT. p. 131-157. Rio de Janeiro: Academia Brasileira de Ciência. 1977.
37. Wrenn, M. E. & Singh, N. Gastrointestinal Absorption of U by Man from Drinking Water. Progress Rept. to USEPA. Univ. of Utah. 1987.
38. Morrow, P. Inhalation and Intravenous Studies of UF_6 in Dogs. Health Physics, 43(6):859, 1982.
39. Bernard, S. R. A Study of the Distribution and Excretion of Uranium in Man. Oak Ridge, OAK Ridge National Lab., Tennessee. Jun 1957.
40. Stevens, W. L. The Distribution and Retention of Hexavalent U-233 in the Beagle. Radiat. Res., 83:109, 1980.
41. Bruenger, F. Comunicação pessoal. 1986.

42. Fisenne, I. M. & Welford, G. A. Natural U Concentration in Soft Tissues and Bone of New York City Residents. Health Phys., 50:739-46, 1986.
43. Schlenker, R.; Keane, A. T.; Holtzman, R. B. The retention of ^{226}Ra in human soft tissue and bone: Implications for the ICRP 20 alkaline earth model, Health Phys., 42:671-93, 1982.
44. Norris, W. P.; Speckman, T. W.; Gustafson, P. F. Studies of the metabolism of radium in man; Am. J. Roentgenol., Radiat. Therapy and Nuclear Medicine, 73:785, 1955.
45. GRS. TRANSLATIONS-SAFETY CODES AND GUIDES. General Principle of Calculation for the Radiation Exposure Resulting from radioactive Effluents in Exhaust Air and Surface Waters, Edition 11/80.
46. Rowland, R. E.; Stehney, A. F.; Lucas, H. F. Dose-Response Relationships for Ra-induced Bone Sarcomas. Health Phys., suppl. 1, 44:15-31, 1983.
47. Spiers, F. W.; Lucas, H. F.; Rundo, J.; Anast, G. A. Leukemia Incidence in the U.S. Dial Painters. Health Phys., suppl. 1, 44:65, 1983.
48. Rowland, R. E., Stehney, A. F.; Lucas H.F. Dose-response Relationships for Female Radium Dial Workers, Radiat. Res., 76:368-383, 1978.
49. Muth, H. and Glöbel, B. Age dependent concentration of ^{226}Ra in human bone and some transfer factors from diet to human tissue, Health Phys., 44, suppl. 1, 1983.

50. Stehney, A. F. & Lucas H. F. Studies on the Radium Content of Humans Arising from the Natural Radium of Their Environment, In: PROC. FIRST INTERN. CONF. ON PEACEFUL USES OF ATOMIC ENERGY, Vol. 11, p. 49-54, Geneva: United Nations. 1956.
51. Godoy, J. M. Entwicklung einer Analysenmethode für die Bestimmung von ^{238}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th , ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{210}Pb und ^{210}Po und ihre Anwendung auf Umweltp Proben. Munique, 1983. (Tese de Doutorado, Universidade de Munique).
52. COMISSÃO NAC. DE ENERGIA NUCLEAR/IRD. Manual de Procedimentos Analíticos. Departamento de Proteção Radiológica Ambiental. 1983.
53. Price, G. R.; Ferretti, R. J. & Schwartz, S. Fluorophotometric Determination of Uranium. Anal. Chem., 25(2):322-331, 1953.
54. Thacher, L. L. & Barker, F. B. Determination of Uranium in Natural Waters. Anal. Chem., 29(11):1575-78, 1957.
55. Centanni, F. A. Roos, A. M.; Desesa, M. A. Fluorimetric Determination of Uranium. Anal. Chem., 28(11):1651-57, 1956.
56. Kin, K. H. & Burnett, W. C. γ -Ray Spectrometric Determination of Uranium-Series Nuclides in Marine Phosphorites. Tallahassee, Department of Oceanography, Florida, 1796-1800, 1983.
57. Chouak, A.; Vuister, P.; Paic', G.; Berrada, M. and Csikai, J. Determination of U and Ra in Rock Samples by Gamma-Spectrometric Method. Rabat, Marrocos, Laboratory of Nuclear Physic, University Mohamed V. Rabat, 445-51. 1979.

58. Lee, C. and Lee, K. M. A Study on the Radiometric Method for the Determination of Uranium and Thorium in Ores. J. of the Korcan Nucl Soc., 12 (2), June, 1980.
59. Amaral, R. S. & Dantas, C. C. Análise do desequilíbrio entre o ^{238}U e ^{226}Ra para determinação radiométrica do urânio na fosforita do Nordeste. In: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR. Energia Nuclear: Anais do 3º CGEN realizado no Rio de Janeiro, 22 a 27 abril. 1990.
60. Amaral, R. S.; Khoury, H. J.; Hazin, C. A. & Mazzilli, B. P. Uranium and ^{226}Ra concentrations in soils and vegetables in the phosphate district of Northeastern Brazil. In: SOCIEDAD MEXICANA DE SEGURIDAD RADIOLOGICA A. C., Anais do V Congreso Anual, vol. II, 2ª parte, p. 292-295, realizado em Sacatecas, México, 22 a 26 noviembre. 1993.
61. Amaral, R. S. & Dantas, C. C. Um método prático para eliminação de dados na calibração radiométrica. In: ASSOCIAÇÃO BRASILEIRA DE ENERGIA NUCLEAR. Energia Nuclear: Anais do 3º CGEN realizado no Rio de Janeiro, 22 a 27 abril, p. 14. 1990.
62. Porrit, R. E. & Bone, S. J. Determination de Uranium in Ores by Radiometric Assay. s.1, s.ed., 1972.
63. Smith, J. R.; Caffrey, A. J.; Helmer, R. G.; Willis, C. P.; Rogers, J. W. Analysis of National Uranium Resources; Evaluation Reference Materials Form New Brunswick Laboratory, Washinton, U. S. Department of Energy, 1981.
64. Paic', G.; Reggoug, A.; Chouak, A. Absolute Measurement of the RA/U Ratio in Uranium Ores Using a Hiperpure Ge Detector. J. Appl. Radioat. Isot, 33: 1796-1800, 1982.

65. Takeishi, H. Métodos de Análise de Rádio em Água. Rio de Janeiro, IRD/CNEN. 1979.
66. Rushing, D. R., Garcia, W. J.; Clark, D. A. The analysis of effluents and environmental samples for uranium mills and of biological samples for radium, polonium and uranium. Radiological Health and Safety in Mining and Milling of Nuclear Materials. V. 2, p. 187-229. Vienna, IAEA. 1964.
67. Schuttelkopf, H. & Kiefer, H. Radium-226 contamination of the Black Florest and the radioecological behaviour of radium. Environmental Migration of long-lived Radionuclides, IAEA, 345:352, 1982.
68. Page, A. L. Methods of Soil Analysis. Number 9 (part 2) in the Series Agronomy. Second Edition. Madison, Wisconsin USA. 1982.
69. Vasconcellos, L. M. H. Amaral, E. C. S.; Penna-Franca, E.; Vianna, M. E. C. M. Concentrações de ^{226}Ra e ^{210}Po em Produtos Agrícolas Cultivados nas Vizinhanças da Mina e Usina de Urânio do Planalto de Poços e Caldas, Minas Gerais. Ciência e Cultura. 388(8). 1986.
70. Bray, R. H. A nutrient mobility concept of soil-plant relation-ships, Soil Sci, 78:9-22, 1954.
71. Létouneau, C. Transfer of Radionuclides of the Uranium and Thorium Decay Chains in Aquatic and Terrestrial Environmentals; Canada, Atomic Energy Control Board Ottawa, april 1987.
72. Burkart, W., Kopp, P. & Goerlich, W. Studies on Radium Uptake by Edible Plants from Soil Contaminated Several Dacades Ago,

IAEA-SR-85/41, 1983.

73. McDowell-Boyer, L. M., Watson, A. P.; Travis C. C. A Review and Recommendations of Dose Conversion Factors and Environmental Transport Parameters for ^{210}Pb and ^{226}Ra . Oak Ridge National Labs, NTIS-PB-294, 242, 1979.
74. Kunasheva, K. G. Radium Content of Plant and Animal Organisms. Trudy Biogeokhim, Lab. Akad. Nauk SSSR. 6:98-105, 1944.
75. Rayno, D. R. Estimated Dose to Man from Uranium Milling Via the Terrestrial Food-chain Pathway. Argonne National Lab., 1982. (ANL/ES-125)
76. Ashkinazi, E. I. Quantitative Laws Governing the Migration of Magnesium, Calcium, Radium-226, Thorium-228 in the Link Between Soil and Plants. Gig. Sanit., 80(2), 38-40 (translated from the Russian by Scientific Information Services, Melbourne, AAEC-LIB, 73:614-778), 1982.
77. Sheppard, M. I., The Environmental Behaviour of Uranium and Thorium. Atomic Energy of Canada Limited, Pinawa, AECL-6795, 1980.
78. Nathwani, J. S. & Phillips, C. R. Adsorption of Ra-226 by soil (I). Chemosphere, 5:285-291, 1979.
79. Nathwani, J. S. & Phillips, C. R. Adsorption of Ra-226 by soil in the presence of Ca^{2+} ions. Specific adsorption (II), Chemosphere, 5:293-299, 1979.
80. Bettencourt, A. O.; Teixeira, M. M. G. R.; Madruga, M. J. and

- Faisca, M. C. Dispersion of ^{226}Ra in a Contaminated Environment. Rad. Prot. Dosim., 24(1-4):101-108, 1988.
81. Morse, R. S. & Welford, G. A. Dietary Intake of ^{226}Ra , Health Phys., 21(1):53-55. 1971.
82. INSTITUTO BRASILEIRO DE GEOGRAFIA E ESTATÍSTICA (IBGE), Pesquisa de Orçamentos Familiares 1987/1988: Consumo Alimentar Domiciliar "per capita", N° 2, Brasília.
83. U. S. NUCLEAR REGULATORY COMMISSION. Calculation of Annual Dose to Man Routine Releases of Reactor Effluents for the Purpose of Evaluating Compliance with 10 CFR 50, Appendix I. Washington, D. C. Revision 1. October, 1977. (REGULATORY GUIDE. 1.109/77).
84. International Commission on Radiological Protection, 1990, Radiation Protection. (Oxford: Pergamon Press). (ICRP 60)
85. Brumini, R. e Col. Câncer no Brasil: Dados Histopatológicos. Ministério da Saúde. 1982.
86. Rowland, R. E., Stehney, A. F. & Lucas, H. F. Dose-response Relationships for Radium-induced Bone Sarcomas. Health Phys., 44(Suppl. 1):15-31, 1983.
87. Penna-Franca, E. Radiochemical and Radioecological studies on Brazilian areas of high natural radiation. In Annual Report to USAEC, NYO-3273-7, Rio de Janeiro, UFRJ, p. 1-5. 1967.
88. Siegel, Sidney. Estatística Não-Paramétrica Para as Ciências do Comportamento. Tradução de Alfredo Alves de Farias.

McGRAW-HILL, São Paulo, 1975.

89. Pascoa, A. S. and Nóbrega, A. W. Non-nuclear mining with radiological implications in Araxá. J. Energy, Oak Ride, Tecnical Information Center, p. 889. 1980.
90. Morishima, O.; Koga, T.; Kawai, H; Honda, Y. and Katsurayama, K. Studies on the movement and distribution of uranium in the environment-distribution of uranium in agricultural products. J. Radioat. Res., 18:139-50, 1977.
91. Frindik, O., Uran in Böden. Gemüse, Getreide und Obst. Landwirtsch. Forschung 41:188-192, 1988.
92. Amaral, E. C. S., Carvalho, Z. L.; Godoy J. M. Transfer of ^{226}Ra and ^{210}Po to Forage and Milk in a Brazilian High Natural Radioactivity Region. Radiation Protection Dosimetry, 24(1/4):119-21, 1988.
93. INFORME Agropecuário. Sistema Estadual de Pesquisa Agropecuária: EPAMIG, ESAL, UFMG, UFV. Ano 8. N° 86. Belo Horizonte. Fevereiro/82.
94. Cavalcante, A. T., Cultivo de Bananeira. Empresa Pernambucana de Pesquisa Agropecuária - IPA. Instruções Técnicas, N° 14, Fevereiro/83.
95. CSS: STATISTICA. CSS (Complete Statistical System). Copyright 1986-1991 by StatSoft, Inc. 2325 East 13th Street, Tulsa OK 74104.
96. Marple, M. L. Radium-226 in Vegetation and Substrates at

Inative Uranium Mill Sites. Los Alamos, 1980. (Theses Ph.D., Los Alamos). 1980.

97. Lebecka, J. Shubacz, K., Chalupnik, S., Tomza, I., Pluta, J.; Skowronek, J. Influence of Mining Activity on Distribution of Radium in the Natural Environmental. 4th Working Meeting Isotopes in Nature Leipzig, (Central Minig Inst., Katowice, Poland) Set. 1986.
98. Dulewski, J. Zabrze, 1980. (Doctoral Theses, Instytut Kształtowania Srodowiska, Polish Academy of Sciences).
99. Till, J. E. & Meyer, H. R. RADIOLOGICAL ASSESSMENT. A Text-book on Environmental Dose Analysis. NUREG/CR-3332. ORNL-5968. Washington. September 1983.
100. Amaral, E. S. C.; Godoy, J. M.; Rochedo, E. R. R.; Vasconcellos, L. M. H. & Pires do Rio, M. A.; The environmental impact of the uranium industry is the waste rock a significant contributor? Radiation Protection Dosimetry, 22(3):165-171, 1988.
101. Norris, S. C.; Rowe, M. D. and Holtzman, A. F. Review of Tecnical Justification of Assumptions and Methods used by the Environmental Protection Agency for Estimating Risks Avoided by Implementing MCLs for Radionuclides. BNL-48482. November 1992.
102. Eckshlager, K. Erros, Measurement and Results in Chemical Analysis. Trad.: Chalmers, R. A. University of Aberdeen. London. 1969.

103. Vasconcellos, M. B. A. Estudo Comparativo dos Métodos Destrutivos e Não-destrutivos em Análise por Ativação de Rochas. São Paulo, 1978. (Dissertação e Tese de Doutorado, Inst. de Energia Atômica).

APÊNDICE

A. Desvio Padrão.

O desvio padrão (S) de uma série de determinações, é dado pela fórmula⁽¹⁰²⁾

$$S = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (X_i - X)^2}{N-1}} \quad (15)$$

Onde X é o valor médio das determinações.

B. Exatidão.

A exatidão pode ser calculada quando se conhece o valor tido como verdadeiro (U), de uma determinada grandeza que que está sendo medida. Será então dada pela percentagem⁽¹⁰³⁾

$$\text{Exatidão} = \frac{X - U}{U} \times 100 \quad (16)$$

C. Avaliação do Erro.

segundo a referência⁽¹⁰³⁾, McFarren desenvolveu um teste estatístico, por meio do qual se calcula o erro do método, empregando a seguinte fórmula

$$\text{Erro} = \frac{d + 2S}{U} \times 100 \quad (17)$$

Onde d é o valor absoluto do erro médio, S o desvio padrão, e U é o valor tido como verdadeiro.

O erro médio é igual à diferença entre a média de uma série de resultados e o valor verdadeiro, ou seja,

$$d = X - U \quad (18)$$

Com base no valor obtido para o erro, os métodos analíticos serão divididos em três classes:

- a) excelentes - o erro é igual ou inferior a 25%;
- b) aceitável - o erro é de 50% ou menos;
- c) inaceitável - o erro é maior do que 50%.

D. Limite de Detecção.

O limite de detecção, que é a menor quantidade de um componente que pode ser determinado, adotado por Eckshlager⁽¹⁰²⁾, toma por base o "background compton" ou o experimento branco, ou seja, a radiação de fundo. Esta definição do limite de detecção é expressa pela relação

$$X = X_0 + K \times S_0 \quad (19)$$

Onde X é o menor valor medido, X_0 é o valor médio da radiação de fundo, S_0 é o desvio padrão caracterizando a variável da radiação de fundo, e o valor de K pode ser obtido das tabelas de distribuição gaussiana. Alguns de valores de K e as respectivas probabilidades, são dados na Tabela a seguir:

Tabela D1. Valores do fator K e suas probabilidades

K	Probabilidade (%)
3	99,86
2	97,73