



CNEN/SP

ipen Instituto de Pesquisas
Energéticas e Nucleares

AUTARQUIA ASSOCIADA A UNIVERSIDADE
DE SÃO PAULO

AVALIAÇÃO DA DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA DO NORDESTE QUE UTILIZA OS RECURSOS HÍDRICOS DA REGIÃO

RICARDO DE ANDRADE LIMA

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

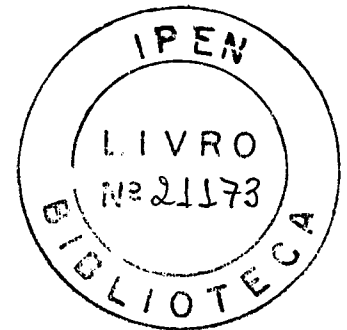
Orientador:
Dra. Brigitte Roxana Soreanu Pecequilo

**São Paulo
1996**

INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES
Autarquia associada à Universidade de São Paulo

AVALIAÇÃO DA DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA DO
NORDESTE QUE UTILIZA OS RECURSOS HÍDRICOS DA REGIÃO

RICARDO DE ANDRADE LIMA



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

Orientadora:
Dra. Brigitte Roxana Soreanu Pecequilo

SÃO PAULO
1996

À Ilza,
Tatiana, Karina,
Jéssica e Marcos,
dedico

AGRADECIMENTOS

À Dra. Brigitte Roxana Soreanu Pecequilo.

Ao Dr. Marcos de Carvalho Lisboa.

À Sylvia de Andrade Lima Lisboa.

Aos colegas do Departamento de Energia Nuclear Atílio Dall'Olio, Carlos Alberto Brayner de Oliveira Lira, Clovis Abrahão Hazin, Fernando Roberto de Andrade Lima, Helen Jamil Khoury, Sueldo Vita da Silveira e Waldeciro Colaço.

Ao Departamento de Energia Nuclear da UFPE.

Ao Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, em especial ao Núcleo de Radioproteção Ambiental.

A todos que colaboraram para a realização deste trabalho: mencionar cada favor prestado seria uma longa lista e agradecer-lhes à altura, impossível.

**AVALIAÇÃO DA DOSE NA POPULAÇÃO DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA DO
NORDESTE QUE UTILIZA OS RECURSOS HÍDRICOS DA REGIÃO**

RICARDO DE ANDRADE LIMA

RESUMO

A região urano-fosfática do Nordeste do Brasil, na costa sedimentar dos estados de Pernambuco e Paraíba, é uma das áreas de elevada radioatividade natural do Brasil. Nesta região de alta densidade demográfica, a população está exposta a níveis aumentados de radiação causados pela presença do urânio e seus descendentes. Este trabalho foi desenvolvido com o objetivo de determinar as concentrações de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn nos recursos hídricos disponíveis na região, a taxa de ingestão anual destes radionuclídeos derivada do consumo de água, a dose comprometida nos órgãos de deposição e as doses efetivas. As concentrações médias de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn foram de 25 mBq/L, 282,2 mBq/L e 104,7 Bq/L respectivamente. Estes valores são superiores aos encontrados na região do planalto de Poços de Caldas e para a região fosfática da Carolina do Norte (USA). As doses nos órgãos de deposição para urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn , variaram entre $0,18 \times 10^{-5}$ mSv/ano e 11,4 mSv/ano, correspondendo às doses efetivas de $0,12 \times 10^{-3}$, $0,74 \times 10^{-1}$ e 0,92 mSv/ano, respectivamente para urânio, ^{226}Ra e ^{226}Rn . Estimou-se assim, para a população local, devido à ingestão de ^{222}Rn , um incremento de 1,25% nos casos de câncer e, decorrente da ingestão de ^{226}Ra , incrementos de 7% nos casos de carcinoma de crânio e de 3% nos de casos de sarcoma de osso.

**POPULATION ASSESSED DOSE DERIVED FROM WATER USE IN THE
PHOSPHATE-RICH AREA OF NORTHEASTERN BRAZIL**

RICARDO DE ANDRADE LIMA

ABSTRACT

The phosphate-rich region of Northeastern Brazil, on the sedimentary coastal area of the Pernambuco and Paraíba states, presents higher than normal levels of natural radioactivity. People living in this highly populated area are continuously exposed to ionizing radiation derived from uranium and its progeny. The present work was carried out to determine the concentrations of uranium, ^{226}Ra , and ^{222}Rn in the water bodies that cross the phosphate area and, based on the rate of ingestion for these radionuclides due to water consumption, to assess the committed doses to deposition organs and the effective doses. The average concentrations found for uranium, ^{226}Ra , and ^{222}Rn were 25 mBq/L, 282.2 mBq/L, and 104.7 Bq/L, values higher than those found in the Poços de Caldas plateau, Brazil, and in the phosphate-rich area of North Carolina, USA. Considering the annual rates of intake, the assessed doses to deposition organs for uranium, ^{226}Ra and ^{222}Rn , ranged from 0.18×10^{-5} mSv/y to 11.4 mSv/y. The corresponding effective doses were 0.12×10^{-3} , 0.74×10^{-1} , and 0.92 mSv/y for uranium, ^{226}Ra , and ^{222}Rn , respectively. Increments of 1.25% in the incidence of cancer due to ^{222}Rn ingestion and 7% of head sarcomas and 3% of osteosarcomas occurrences due to ^{226}Ra ingestion were estimated for the local population.

SUMÁRIO

Página

1	INTRODUÇÃO.....	1
2	REVISÃO BIBLIOGRÁFICA	
	2.1 Radionuclídeos naturais.....	5
	2.2 Considerações gerais sobre o urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn	9
	2.2.1 Urânio.....	9
	2.2.2 Rádio.....	16
	2.2.3 Radônio.....	24
3	REGIÃO URANO-FOSFÁTICA DO NORDESTE: "Aspectos Gerais".....	31
4	MÉTODOS DE ANÁLISE DO URÂNIO, ^{226}Ra e ^{222}Rn	
	4.1 Métodos para determinação do urânio.....	40
	4.1.1 Fluorimetria.....	40
	4.1.2 Fluorimetria a laser.....	42
	4.1.3 Técnica do registro de traços de fissão.....	43
	4.1.4 Análise por ativação com nêutrons térmicos.....	44
	4.2 Método do precipitado para determinação do ^{226}Ra	44
	4.2.1 Medida na fase sólida.....	45
	4.2.2 Medida por cintilação.....	46
	4.2.3 Medida por emanção.....	46
	4.3 Métodos para determinação do ^{222}Rn	49
	4.3.1 Método do carvão ativado.....	49
	4.3.2 Método de cintilação líquida.....	50
5	PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL	
	5.1 Seleção da área de interesse.....	51
	5.2 Pontos de coleta.....	53
	5.3 Procedimentos de coleta.....	55

5.4	Seleção dos métodos para determinação de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn	56
5.5	Procedimentos de análise.....	57
5.5.1	Método fluorimétrico para determinação de urânio.....	57
5.5.2	Método de emanção do radônio.....	59
5.5.3	Método de cintilação para determinação do ^{222}Rn	63
5.6	Metodologia de avaliação da dose e do risco.....	65
5.6.1	Quantificação da exposição à radiação.....	71
5.6.2	Estimativa do risco.....	71
5.6.2.1	Risco acumulado para indução de carcinoma de crânio.....	73
5.6.2.2	Risco acumulado para indução de sarcoma de osso.....	75
5.7	Determinação dos parâmetros físico-químicos.....	77

6 RESULTADOS E DISCUSSÃO

6.1	Avaliação dos métodos de medida.....	80
6.1.1	Método fluorimétrico.....	80
6.1.2	Método de determinação do ^{226}Ra pela emanção do ^{222}Rn	81
6.1.3	Método de cintilação líquida.....	83
6.2	Concentração de urânio.....	89
6.3	Concentração de ^{226}Ra	102
6.4	Concentração de ^{222}Rn	115
6.5	Ingestão de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn	127
6.6	Avaliação da dose.....	131
6.7	Estimativas de risco.....	137
6.7.1	Risco de ingestão do ^{226}Ra	137
6.7.2	Risco de ingestão do ^{222}Rn	138

7	CONCLUSÕES.....	141
8	FUTUROS TRABALHOS.....	144
	ANEXO A - LOCALIZAÇÃO GEOGRÁFICA DOS POÇOS	146
	ANEXO B - GRANDEZAS DE MEDIDA DAS RADIAÇÕES	153
	ANEXO C - PARÂMETROS FÍSICO-QUÍMICOS DAS ÁGUAS DA REGIÃO URANO-FOSFÁTICA DO NORDESTE.....	159
	REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS.....	164

1 INTRODUÇÃO

A presença de radionuclídeos naturais na biosfera faz com que os seres humanos estejam permanentemente expostos às radiações ionizantes. Atualmente, existe uma grande preocupação em estudar, sob o ponto de vista de proteção radiológica, regiões de alta radioatividade natural. A Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP-60)¹, resolveu considerar no estudo dos efeitos biológicos das radiações no homem, o conceito de detrimento ou seja, a medida do dano total, que pode eventualmente ser esperado por um grupo e seus descendentes, em decorrência da exposição à fonte de radiação. Por esta razão, os trabalhos desenvolvidos são direcionados, em sua grande maioria, no sentido de avaliar o detrimento biológico no homem, decorrente de exposições prolongadas a baixas doses de radiações ionizantes, devidas principalmente aos radionuclídeos naturais das séries do ^{238}U e do ^{232}Th ².

Nas regiões de alta radioatividade natural, os radionuclídeos estão presentes nos vários compartimentos do ecossistema, resultantes de processos interativos naturais que ocorrem na água, solo, ar e biota ou então por meio de atividades antropogênicas que contribuem de maneira

significativa para o aumento das concentrações desses radionuclídeos no meio ambiente.

No planeta, estas áreas de alta radiotividade natural têm sido objeto de avaliação das concentrações dos radionuclídeos presentes e a sua contribuição na dose da população. Recentemente, a ICRP¹ enfatizou, em suas recomendações, a necessidade de se efetuar um controle sobre as exposições à radiação natural, apoiada no fato que esta radiação é responsável por cerca de 70% da dose total recebida pela população, decorrente de todas as fontes³.

No Brasil, existem várias áreas de radioatividade natural elevada devido à presença de depósitos de urânio e/ou tório. As mais conhecidas e estudadas são as areias monazíticas da costa do estado do Espírito Santo e as regiões de intrusão alcalina no estado de Minas Gerais^{4,5}.

Levantamentos geológicos realizados na faixa sedimentar costeira do Nordeste do Brasil mostraram a existência de urânio em jazidas de fosfato. Esta faixa se estende desde a costa pernambucana até a paraibana⁶, com extensão aproximada de 150 km e largura média de 4 km.

As rochas fosfáticas de origem marinha contêm pequenas quantidades de urânio e o conteúdo deste elemento varia diretamente com a concentração de fosfato no minério⁷.

No âmbito da bacia sedimentar costeira do Nordeste do Brasil, determinações realizadas em amostras de fosforita acusaram a presença de urânio e tório⁶, sendo que as concentrações de U_3O_8 variaram entre 150 e 300 $\mu\text{g.g}^{-1}$ e as do tório de 1 a 5 $\mu\text{g.g}^{-1}$. Conseqüentemente, ao se caracterizarem as zonas mineralizadas, em fósforo, estar-se-á associadamente caracterizando a ocorrência do urânio.

No caso específico da região urano-fosfática do Nordeste do Brasil, caracterizada por alta densidade demográfica e por atividades agrícola e industrial significativas sobre a jazida, considerando ainda a não existencia de avaliações radiométricas nesta região, o presente estudo possibilita conseguir informações necessárias para a determinação das doses de radiação e seus riscos à população, como recomendadas pela ICRP¹. Os dados obtidos servirão também para monitorar possíveis alterações ambientais em decorrência das atividades extrativas e industriais na região. Por esta razão, o levantamento das concentrações dos radionuclídeos realizado neste trabalho é de alta relevância.

Neste trabalho foram determinadas as concentrações de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn nos recursos hídricos disponíveis à população da região urano-fosfática do Nordeste do Brasil. A análise dos recursos hídricos foi considerada prioritária porque, além do fato de ser a água o principal meio de

transporte e de assimilação dos radionuclídeos na cadeia alimentar, a população da região dispõe unicamente destes recursos e utiliza-os sem realizar nenhum tratamento prévio. As concentrações médias de U_3O_8 encontradas nas jazidas de fosfato evidenciaram a necessidade da avaliação dos níveis de urânio. Além disso foram determinados os níveis de ^{226}Ra (produto do decaimento do ^{238}U , emissor alfa e gama de meia vida igual a 1620 anos), por ser de grande importância radiológica pela fácil assimilação orgânica⁸ e de ^{222}Rn (gás nobre, produto imediato do decaimento radioativo do ^{226}Ra , meia vida de 3,82 dias), por ser responsável pela maior parte da radioatividade das águas⁹. Foram também determinados os parâmetros físico-químicos das águas com a finalidade de estudar possíveis correlações destes parâmetros com os teores dos radionuclídeos. Com os resultados obtidos foi determinada a dose interna recebida pela população devida a ingestão de água, estimando o aumento da incidência de câncer na população local.

2 REVISÃO BIBLIOGRÁFICA

2.1 Radionuclídeos naturais

O meio ambiente possui elementos radioativos denominados radionuclídeos naturais, que expõem, de maneira permanente, os seres vivos à radiação ionizante. Esses radionuclídeos podem ser subdivididos conforme sua origem em três grupos²: no primeiro estão os radionuclídeos que têm a meia-vida da ordem da idade da Terra (5×10^9 anos); neste grupo estão o ^{238}U , ^{232}Th e o ^{235}U que decaem em séries de elementos radioativos até chegar a isótopos estáveis do Pb e os radionuclídeos que decaem diretamente num elemento estável, como ^{40}K , ^{87}Rb , ^{124}Sn , ^{50}V e outros de menor importância ambiental. No segundo grupo estão incluídos os radionuclídeos de meia-vida curta em relação à idade da Terra, originados do decaimento das séries radioativas. O terceiro grupo é constituído pelos produtos da interação das radiações cósmicas com núcleos dos átomos presentes na atmosfera. Nessas reações são formados principalmente ^3H , ^{14}C , ^7Be , ^{24}N , ^{32}P , ^{35}S , ^{28}Cl e ^{32}Si . Estes elementos produzidos na atmosfera se depositam posteriormente na superfície de Terra.

A série do ^{238}U ² (figura 2.1) , identificada como a

SÉRIE DO ^{238}U						
Np						
U	^{238}U 4,5 x 10 ⁹ a		^{234}U 2,5 x 10 ⁵ a			
Po	↓	^{234}Po 1,17 m	↓			
Th	^{234}Th 24 d		^{230}Th 8 x 10 ⁴ a			
Ac			↓			
Ra			^{226}Ra 1600 a			
Fr			↓			
Rn			^{222}Rn 3,82 d			
At			↓			
Po		^{218}Po 3,05 m		^{214}Po 162 μs		^{210}Po 138 d
Bi		↓	^{214}Bi 19,7 m	↓	^{210}Bi 5 d	↓
Pb		^{214}Pb 26,8 m		^{210}Pb 22 a		^{206}Pb estável
Tl						

SÉRIE DO ^{232}Th				
	^{232}Th 1,4 x 10 ¹⁰ a		^{228}Th 1,9 a	
	↓	^{228}Ac 6,13 h	↓	
	^{228}Ra 5,7 a		^{224}Ra 3,64 d	
			↓	
			^{220}Rn 55,6 s	
			↓	
		^{216}Po 0,15 s		^{212}Po 0,3 μs
		↓	^{212}Bi 60,6 m	↓
		^{212}Pb 10,6 h		^{208}Pb estável
			^{208}Tl 3,1 m	

SÉRIE DO ^{235}U				
	^{235}U 7 x 10 ⁸ a			
	↓	^{231}Pa 3,3 x 10 ⁴ a		
	^{231}Th 25,6 h		^{227}Th 18,7 d	
		^{227}Ac 22 a	↓	
			^{223}Ra 11,4 d	
			↓	
			^{219}Rn 3,9 s	
			↓	
			^{215}Po 1,8 ms	
			↓	^{211}Bi 2,15 m
		^{211}Pb 36,1 m		^{207}Pb estável
			^{207}Tl 4,8 m	

Figura 2.1 Séries radioativas naturais

série ($4n + 2$), consiste num total de 14 transformações, sendo 8 decaimentos α e seis decaimentos β desde o ^{238}U até o elemento estável ^{206}Pb . O sexto elemento da série é o ^{226}Ra , de meia-vida 1600 anos, que decai para o gás nobre ^{222}Rn . Os quatro decaimentos seguintes (^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi e ^{214}Po) são conhecidos como os descendentes de meia-vida curta do radônio. Por sua vez, o ^{214}Po decai por emissão alfa para o ^{210}Pb (meia-vida de 22,3 anos). Além do ^{238}U , outros dois elementos nesta série também têm meia-vida longa, o ^{234}U ($2,5 \times 10^5$ anos) e o ^{230}Th ($8,0 \times 10^4$ anos).

A série do tório (série $4n$) (figura 2.1), é iniciada pelo ^{232}Th , único elemento de meia-vida longa nesta cadeia de decaimento. Nesta série também é encontrado o gás nobre ^{220}Rn , descendente do ^{224}Ra , de meia-vida de apenas 55,6 segundos. Por causa da curta meia-vida do ^{220}Rn não é obtido nenhum equilíbrio entre os seus descendentes, entretanto, pode ocorrer equilíbrio entre o ^{212}Pb (10,64 anos) e o restante da série; o crescimento e o decaimento destes descendentes são governados pelo ^{212}Pb .

A terceira série radioativa (figura 2.1), conhecida como a série do actínio (série $4n + 3$), é iniciada pelo ^{235}U . Nesta, o ^{219}Rn é o descendente direto do ^{223}Ra e tem a menor meia-vida dentre seus isotópos (3,95s). Nenhum estado de equilíbrio é encontrado entre o ^{219}Rn e seus descendentes.

As fontes naturais são responsáveis pela maior parcela das radiações recebidas pelo homem. Essas radiações ocorrem tanto por exposições externas, quando originadas dos radionuclídeos presentes no meio ambiente ou das radiações cósmicas, como de exposições internas, decorrentes dos radionuclídeos assimilados pelo homem por ingestão ou inalação¹⁰.

A dose causada pela radiação ambiental varia dependendo da ocorrência de minérios radioativos. As duas regiões com maior taxa de radiação ambiental em nosso planeta situam-se na Índia nos arredores de Kerala e no Brasil, na praia de Guarapari, no estado do Espírito Santo. Ambos os locais evidenciaram a ocorrência de areia monazítica¹¹.

A dose anual média estimada em decorrência da exposição de radionuclídeos naturais é de aproximadamente 2,0 mSv/ano. Deste total, os radionuclídeos das séries do ^{238}U e do ^{232}Th contribuem com cerca de 83%, o ^{40}K com 16% e o restante(1%) corresponde às contribuições dos elementos das séries do ^{235}U , do ^{87}Rb e dos produtos das reações cósmicas³.

As abundâncias baixas dos radionuclídeos da série do ^{235}U e dos produtos das reações cósmicas tornam esses radionuclídeos de pouca relevância em relação às doses das radiações naturais¹².

Apesar do ^{40}K contribuir com percentual elevado na estimativa da dose, a faixa de variação desta dose é relativamente baixa; sendo o potássio homeostaticamente controlado pelo corpo humano, sua concentração no corpo independe da dieta alimentar. Um adulto apresenta em média 2g de potássio por quilo de massa corpórea; como a abundância isotópica¹² do ^{40}K é de aproximadamente $1,2 \times 10^{-2}$, sua atividade média no corpo, segundo o Conselho Nacional de Proteção à Radiação e Medidas (NCRP)¹³, é cerca de 60 Bq/kg.

Tendo em vista que as ocorrências de fosfatos em regiões sedimentares apresentam baixas concentrações de tório, o principal aumento dos níveis ambientais da radiação nestas regiões é causado pelos radionuclídeos da série do ^{238}U , com ênfase para o ^{226}Ra e ^{222}Rn e seus descendentes¹⁴. Este fato justifica o estudo do comportamento destes radionuclídeos na região urano-fosfática do Nordeste.

2.2 Considerações gerais sobre urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn

2.2.1 Urânio

O urânio é o elemento de ocorrência natural com maior número atômico. Todos os seus isótopos naturais são radioativos, compreendendo os nuclídeos ^{238}U , ^{235}U e ^{234}U , com abundâncias isotópicas de 99,28, 0,72 e 0,005%

respectivamente. Um micrograma de urânio natural equivale a 12,21 mBq de ^{238}U , 12,21 mBq de ^{234}U e 0,37 mBq de ^{235}U ¹⁵.

O urânio é encontrado na natureza principalmente em dois estados de oxidação, U^{4+} e U^{6+} . O estado U^{4+} pode ser considerado como "primário", pois é nessa forma que o urânio é encontrado nas rochas ígneas ou metamórficas, as quais se formam sob baixa pressão de oxigênio. Seu baixo raio iônico, igual a 1,04 Å, evita que seja incorporado em minerais comuns formadores de rocha, estando, portanto, normalmente localizado em minerais acessórios tais como: zircão, apatita, xenotime⁸. O estado U^{4+} , além de ser relativamente imóvel em soluções, possui uma forte tendência, tanto para se hidrolizar como para formar compostos de baixa solubilidade na água. Por outro lado, o U^{6+} , que provavelmente sempre existiu com UO_2^{2+} (radical uranila), é bem mais móvel. O radical UO_2^{2+} tem alguma semelhança geoquímica com o Ca^{2+} , com diâmetro igual a este, embora suas configurações estruturais sejam bem diferentes. Sua precipitação em soluções ocorre normalmente na forma de $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]^{4-}$ e $[\text{UO}_2(\text{SO}_4)_2]^{4-}$, ou ainda por substituição ao cálcio, em minerais como a aragonita.

A importância dos complexos carbonatos na mobilidade do urânio tem sido amplamente justificada por experiências e observações, com relação ao sulfato, porém, não existem, ainda, evidências claras. Entretanto, REEDER et al.¹⁶,

estudando o Rio Mackenzie, encontraram concentrações de urânio mais relacionadas com a concentração do sulfato do que com o conteúdo de carbonato.

O ^{234}U , produto da desintegração radioativa de ^{238}U (fig 2.1), deveria ter o mesmo comportamento geoquímico do ^{238}U e ainda, por ter uma meia vida relativamente menor que este, deveria estar em equilíbrio secular. Entretanto, o fracionamento do ^{234}U com relação ao ^{238}U é muito comum na natureza e tem sido objeto de estudos de vários pesquisadores^{17,18,19}. THUMBER propôs quatro hipóteses para explicar este fracionamento: a) destruição das redes cristalinas vizinhas ao nuclídeo no momento do primeiro decaimento alfa; b) comportamento químico diferenciado dos descendentes intermediários (^{234}Th , ^{234}Pa); c) oxidação diferencial do ^{234}U e d) recuo do nuclídeo, durante o decaimento alfa, para a água, na interface água-solo ou, então, para locais mais acessíveis para o processo de lixiviação.

O urânio é um elemento largamente distribuído na crosta terrestre com uma concentração de aproximadamente 2 ppm⁸. A elevação das concentrações no meio ambiente é ocasionada pelas atividades do homem ou por ocorrências naturais. Como atividades do homem são incluídas a mineração e o processamento do urânio, produção de fertilizantes fosfatados e depósitos impróprios de rejeitos contendo

urânio. A erupção vulcânica é a principal ocorrência natural para a tal elevação na superfície terrestre¹¹.

O urânio é encontrado em maiores concentrações em rochas graníticas, rochas metamórficas, areias monazíticas e depósitos de fosfatos e em minerais como uranita e carmotita²⁰.

Vários fatores, tais como o teor da rocha matriz, dos sedimentos ou solos, os efeitos climáticos e a presença de outros elementos químicos afetam a distribuição de urânio nas águas^{16,21}. Neste meio, a forma predominante envolve o íon uranila (UO_2^{2+}) o qual forma complexos estáveis com fosfatos e carbonatos.

Trabalhos realizados nos Estados Unidos considerando a existência de urânio no solo e sua posterior absorção por diferentes culturas, principalmente aquelas que utilizam fertilizantes fosfatados, mostraram ocorrer a ingestão de 1 a 2 μg U diários, por indivíduo, devido à dieta alimentar²².

Atualmente a água, para alguns pesquisadores, é considerada a fonte mais importante de ingestão de urânio. COTHERN e LAPPENBUSCH²³, baseados em dados de aproximadamente 22 000 amostras de água, mostraram que a contribuição da ingestão do urânio por água é superior à dos alimentos. Estes

autores observaram que uma pessoa, ingerindo dois litros de água por dia (com uma concentração média de urânio de 74 mBq/L nos Estados Unidos), ingeriria conseqüentemente 54,02 Bq de urânio por ano. Nestas condições, os alimentos contribuem em média com 15% e a água com 85% do total do urânio ingerido. Se a água consumida tivesse a concentração de 370 mBq/L, a contribuição dos alimentos passaria para somente 3% do total. Vale salientar que pessoas vivendo nas vizinhanças de ocorrências de jazidas de urânio podem consumir água com concentrações superiores às citadas deste radionuclídeo e por esta razão necessitam de acompanhamento especial.

No Brasil, dados disponíveis sobre a concentração de radionuclídeos na água foram obtidos na região uranífica no planalto de Poços de Caldas²⁴, sendo encontrada uma concentração máxima de urânio de 178 ± 19 mBq/L.

Recentemente, foram realizados trabalhos com a finalidade de verificar, por meio de autópsia^{25,26}, a retenção de urânio no corpo humano. O osso aparece como o local de maior deposição de urânio, com valores entre 2 e 62 μg . Esta variação é atribuída a fatores geográficos, dieta alimentar e incertezas analíticas. Também foi verificado que existia uma certa correlação de equilíbrio entre a concentração de urânio depositada no osso e a sua ingestão. O esqueleto de um homem padrão (70 kg) contém aproximadamente 25 μg de U. Isto

representa 11 dias de ingestão de alimentos e água com a concentração média observada para o radionuclídeo nos Estados Unidos. Por outro lado, poucas informações foram obtidas sobre a retenção no tecido; contudo, foi verificado que o urânio contido nos rins do adulto é de cerca de 0,2 µg, o que corresponde a menos de 0,1% do nível limiar de toxicidade para os rins dos mamíferos. A Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos (USEPA)²⁷ aconselha que seja usado nos cálculos o valor de 1% de urânio ingerido como a quantidade absorvida no organismo. Contudo, trabalhos realizados por WRENN et al¹⁵ encontraram que esta absorção alcança valores máximos de 0,9%.

Estudos epidemiológicos realizados por MAY et al.²⁸, sobre a ingestão de urânio em água ou alimentos, concluíram que, com a ingestão a uma taxa média de 185 mBq/dia de urânio natural, admitindo a vida média de 70 anos para a população dos EUA, o risco de indução de sarcoma de osso é de 1,5 sarcomas por 10⁶ pessoas. Os autores, entretanto, consideraram que o risco de indução de câncer não está muito bem estabelecido, pelas incertezas nos processos metabólicos da ingestão do urânio nos seres humanos.

Para o limite de concentração máxima do urânio em água potável, WRENN et al.¹⁵ recomendam como nível de segurança a concentração de 100 µgU/L, baseados exclusivamente no limiar de toxicidade. A USEPA recomenda o

valor de 370 mBq/L fundamentada em considerações radiológicas²⁹.

O Conselho Nacional do Meio Ambiente (CONAMA) do Ministério do Desenvolvimento Urbano e Meio Ambiente, na resolução de nº 20 de 18 de junho de 1986, publicada no Diário Oficial da União de 30/7/1986, estabelece os teores máximos de substâncias potencialmente prejudiciais. No caso do urânio, este limite é de 20 µg/L para mananciais destinados ao abastecimento doméstico após tratamento convencional.

No Brasil, não existe referência direta sobre a concentração de atividade recomendada de urânio em água potável. Na portaria nº 36/GM do Ministério da Saúde, de 19 de janeiro de 1990, foram estabelecidos valores de referência de 0,1 Bq/L para radioatividade alfa total e de 1 Bq/L para beta total. Se os valores encontrados forem superiores aos citados, fica obrigatória a identificação dos radionuclídeos presentes e as medidas de suas respectivas concentrações. Nesses casos, deverão ser aplicados, para os radionuclídeos encontrados, limites estabelecidos pela Comissão Nacional de Energia Nuclear (CNEN), na sua norma Diretrizes Básicas de Radioproteção (CNEN-NE 3.01)³⁰, para se concluir sobre a potabilidade da água.

2.2.2 - Rádío

O rádío é o elemento de número atômico 88 na tabela periódica, pertencendo ao grupo IIA dos metais alcalinos terrosos, destacando-se como seus isótopos mais abundantes no meio ambiente o ^{226}Ra e o ^{228}Ra ³¹.

O rádío apresenta propriedades químicas muito semelhantes aos outros elementos pertencentes aos grupos dos metais alcalinos terrosos, principalmente o bário e o cálcio³¹. Em solução apresenta apenas o estado de oxidação Ra^{2+} . É moderadamente solúvel em água natural e a presença de alto teor de sulfato favorece sua remoção a partir da formação de cristais mistos de $\text{Ba}(\text{Ra})\text{SO}_4$.

A remoção de Ra da solução pode ocorrer por meio de reações de hidrólise, adsorção, complexação e pela formação de sais insolúveis, além da coprecipitação com sais de bário. Também a coprecipitação pode ocorrer com sais de cálcio, magnésio, manganês e ferro ³².

O rádío raramente ocorre sozinho, sendo gerado pelo decaimento do urânio e do tório. Assim, todos os minerais e rochas que contém isótopos naturais de U e Th apresentam quantidades mensuráveis de rádío³³. Os cloretos, brometos ou nitratos de rádío são solúveis em água, mas suas solubilidades decrescem com o aumento da concentração do

respectivo ácido mineral. Concentrações elevadas de sulfato podem ocasionar a formação de RaSO_4 , contudo, raramente a quantidade é suficiente para que o limite de solubilidade seja alcançado³².

Dos quatro isótopos derivados das séries do urânio, actínio e tório, o ^{226}Ra , produto do decaimento do ^{238}U , é o mais importante de ocorrência natural, devido a sua longa meia vida e abundância de seus antecessores³⁴.

TANNER³⁵ observou que águas que contém alto teor de ^{226}Ra apresentam também altas concentrações de ferro, cloretos, cálcio e baixas concentrações de bicarbonatos e oxigênio. BENES et al.³⁶ observaram que o rádio, de modo geral, é mais móvel em aquíferos com altos teores de sólidos dissolvidos. Altas concentrações de ^{226}Ra indicam um enriquecimento do seu antecessor, o ^{238}U , na matriz do aquífero ou a presença do urânio em decorrência de acumulações secundárias. Em aquíferos com alta transmissividade, o rádio pode ser transportado a consideráveis distâncias das ocorrências dos seus antecessores.

O ^{226}Ra ocorre como traços nos minerais de rochas graníticas, metamórficas e depósitos sedimentares em mineralização fosfática. A lixiviação e recuo alfa dos elementos da série do ^{238}U , antecessores ao ^{226}Ra , são os

principais mecanismos de transferência do rádio para o meio aquoso. A sua permanência em solução é controlada pelas características químicas do meio³⁷.

Vários trabalhos têm feito o levantamento dos teores de Ra nos recursos hídricos superficiais e subterrâneos dos Estados Unidos^{8,38,39}. De modo geral as concentrações nos recursos hídricos superficiais são baixas, situando-se na faixa de 0,04 a 0,2 Bq/L para ²²⁶Ra. Concentrações mais elevadas são encontradas nos suprimentos de água subterrânea controlados pelo setor privado.

A USEPA estabeleceu que a radioatividade máxima da água potável para a soma das concentrações de ²²⁶Ra e ²²⁸Ra (emissor β) deve ser de 185 mBq/L e a atividade máxima total alfa de 555 mBq/L, excluindo neste caso as contribuições do urânio e do radônio.

Levando em conta sua radiotoxicidade³, o rádio é considerado um dos mais importantes radionuclídeos de ocorrência natural. Devido a sua similaridade química com o cálcio, o nuclídeo é dissolvido das rochas, tornando-se parte integrante da cadeia biológica, sendo facilmente absorvido pelo homem através da cadeia alimentar. Ao ser ingerido, cerca de 21% é absorvido pela corrente sanguínea. Deste, 85% é depositado nos ossos e o restante uniformemente distribuído nos tecidos moles⁴⁰. FISENE et al.⁴¹ avaliaram dados relativos

à absorção de rádio no corpo humano em 26 países correspondendo a cerca de 30% da população mundial. Eles encontraram que, em média, o corpo humano retém 170 mBq por quilo de osso seco; a retenção do rádio no tecido mole é de 17%, correspondendo a uma atividade de 2,7 mBq/kg.

Na análise da dependência temporal da distribuição de rádio nos tecidos moles e ossos foi verificado que o rádio é liberado mais rapidamente nos primeiros. A formação do osso ocorre pela deposição de materiais na superfície existente. A atividade do rádio reflete a atividade da corrente sanguínea no momento da formação. A contínua e constante ingestão de rádio produz uma atividade uniforme ao longo da seção transversal do osso, contrastando com uma ingestão única de alta concentração que produz pontos de alta atividade⁴².

WRENN et al²⁵. estimaram que o rádio é removido do corpo humano por processos biológicos com uma meia vida de aproximadamente 10 anos. Medidas da razão de rádio e cálcio realizadas com amostras tiradas de autópsias mostraram uma relação constante com a idade, implicando que a ingestão de rádio parece ser proporcional à ingestão de cálcio. Contudo, MUTH e GLOBELL⁴³ encontraram picos de concentração da ordem de 2 a 3 vezes superiores à média, na idade inferior a 1 ano e na de 10 anos(fig 2.2). Eles atribuíram o fato à maior incorporação do rádio durante o período rápido de crescimento. NORRIS et al.⁴⁴ mediram a retenção de rádio

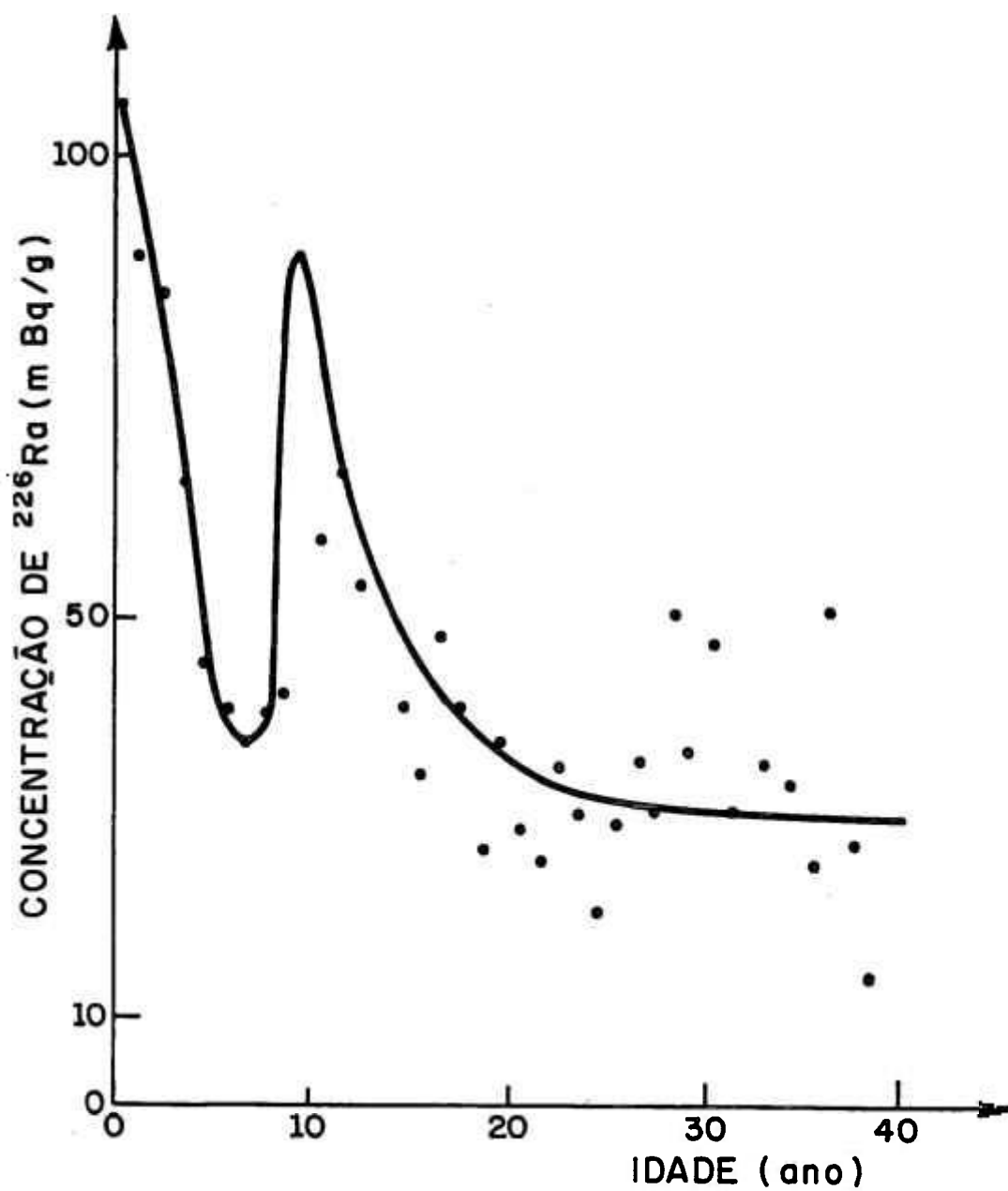


Figura 2.2 - Concentração de ^{226}Ra em função da idade do indivíduo

após uma única ingestão e encontraram que esta retenção declina com a potência do tempo a partir da ingestão.

O maior dano verificado pela assimilação de rádio nos seres humanos é a ocorrência de câncer. Em decorrência da grande afinidade química do rádio com o cálcio tem-se verificado a incidência de sarcomas de ossos para o ^{226}Ra , ^{228}Ra e ^{224}Ra e a incidência de carcinomas de crânio unicamente com a assimilação do ^{226}Ra . Esse fato tem sido explicado pelo acúmulo do ^{222}Rn nas cavidades cranianas⁴⁵.

Trabalho realizado por WRENN et al.²⁵ usando dados da concentração de rádio em esqueletos dos habitantes de três cidades americanas, de algumas cidades da Inglaterra e de Kerala, na Índia, constatou que as concentrações de rádio absorvidas no corpo humano variaram de 7 a 96 vezes o valor da sua ingestão diária. Os valores das três cidades americanas foram 14, 15 e 16 vezes maiores que o valor da ingestão diária; na Inglaterra variou de 7 a 17 vezes e em Kerala foi de 96 vezes. Os valores de Kerala foram questionados, pois sendo uma área de alta radiação de fundo, acredita-se que as concentrações ingeridas foram subestimadas. STEHNEY et al.⁴⁵, também com o mesmo objetivo de verificar a retenção de rádio nos ossos, fizeram a determinação deste nuclídeo em ossos de adultos e crianças que viviam em áreas com águas de alto teor de rádio. Eles concluíram que a retenção nas crianças foi superior que nos

adultos e que a água contribui mais do que os alimentos. Foi observado também, que a razão entre a retenção de rádio pelo organismo humano e a ingestão diária era aproximadamente 25.

A maioria dos estudos experimentais dos efeitos em animais após injeção de rádio tem investigado os danos nos ossos, devido à acumulação e retenção preferencias durante longo tempo e o dano subsequente decorrente do decaimento radioativo. RAABE et al.⁴⁶ expuseram 243 cachorros da raça Beagle, com idade de 1 ano, administrando injeções intravenosas em intervalos de 2 semanas, a doses na faixa de 0,9 a 370 kBq por quilo do animal. Mortes prematuras e incidência de sarcoma de ossos mostraram claramente a relação entre a dose e o risco com a exposição. Kofranek e col.⁴² expuseram 431 ratos a uma injeção única intraperitoneal com uma dosagem de até 925 kBq de ²²⁶Ra por quilo de animal. A menor dose que induziu sarcoma de osso foi de 63 kBq de ²²⁶Ra por quilo do animal. Os resultados de estudos com animais confirmam a incidência de sarcomas, carcinomas e necroses, provendo uma base de dados para estudos estatísticos.

Baseados em estudos epidemiológicos com pintoras de relógio que utilizavam tinta a base de rádio, MAY et al.²⁸, calculando o risco de vida para um milhão de pessoas ingerindo 185 mBq de rádio por dia, estimaram a ocorrência de 12 carcinomas de cabeça e 9 sarcomas de osso para tal

ingestão. A incidência natural é de 375 casos de carcinomas e 750 casos de sarcoma admitindo uma expectativa de vida de 75 anos. Portanto, o consumo de água com a concentração de ^{226}Ra no nível máximo permitido para os Estados Unidos (185 mBq/L), acarretaria na população um acréscimo de 3,2 e 1,2% dos casos de carcinomas de cabeça e sarcoma de osso, respectivamente.

Estudos epidemiológicos com pacientes que se submeteram ao tratamento com injeções de ^{224}Ra para o combate de artrite da coluna e infecção tubercular dos ossos têm fornecido informações dos danos biológicos⁴². A meia vida do ^{224}Ra é de somente 3,64 dias e o seu decaimento, após a assimilação no osso, ocorre preferencialmente na superfície, em contraste com o ^{226}Ra que decai em todo o volume. Na análise desse grupo foi constatado um aumento significativo de câncer de osso, tórax e pulmão.

BEAN et al.⁴⁷ realizaram um trabalho estatístico da incidência de câncer numa pequena comunidade de Iowa(EUA), que apresenta alta concentração de rádio no sistema de abastecimento de água (174 mBq/L); foi constatado um aumento significativo de câncer de bexiga e pulmão nos homens e de tórax e pulmão nas mulheres. Casos de câncer de osso não foram investigados por causa do pequeno número de observações em relação aos casos esperados.

2.2.3 - Radônio

O radônio é o gás nobre de maior número atômico da tabela periódica, com ponto de fusão em -71°C e de ebulição em $-61,8^{\circ}\text{C}$. Sua solubilidade na água é de $230\text{ cm}^3/\text{L}$ a 20°C . Em sistemas fechados, em estado de equilíbrio, a concentração do radônio no ar é de cerca de quatro vezes a concentração na água.

Por ser um gás quimicamente inerte, este nuclídeo tem a sua ocorrência controlada pelas condições do meio, tais como temperatura, pressão atmosférica, umidade e precipitação pluviométrica. Além disso, o radônio é liberado da rocha difundindo-se pelas fraturas desta e podendo ser transportado pela água e pelo ar. Por esta razão, as propriedades geofísicas das rochas e dos solos desempenham um papel preponderante na sua ocorrência e difusão. Neste sentido, BARRETO⁴⁸ investigou a taxa de emanação e a percentagem de radônio que escapa de vários tipos de rochas e minerais, mostrando que a variação no escape deste gás foi de 1 a 20%. As emanações mais fortes foram encontradas em rochas graníticas e conglomeradas e as mais fracas em rochas básicas e calcáreas. Altas atividades do radônio estão associadas com rochas graníticas, minerais de urânio, como uranita, carmonita e também com resíduos de fertilizantes fosfatados.

O radônio é um gás largamente distribuído na

superfície terrestre, entretanto seus níveis no meio ambiente variam muito de um lugar para outro. Seus níveis de exposição aumentam em ambientes fechados com pouca circulação de ar. Em regiões temperadas, suas concentrações no interior das residências chegam a valores 8 vezes superiores às existentes no exterior. Entretanto, não se tem conhecimento de dados relativos a regiões tropicais. Nestas áreas, em decorrência das condições climáticas, as residências são projetadas para permitir maior circulação de ar; por esta razão é possível que as concentrações de radônio no interior e exterior dessas residências apresentem concentrações equivalentes⁴².

Entre os elementos radioativos naturais encontrados na água, o radônio é o mais abundante; entre seus isótopos originados das três séries radioativas, o ^{222}Rn é o que melhor caracteriza as águas e o mais fácil de ser encontrado em consequência de sua meia vida relativamente longa quando comparada com a dos outros isótopos. Por esta razão, a legislação vigente no Brasil para classificação de água mineral radioativa, Código de Águas Minerais (CODAMA)⁴⁹, de uso comercial, faz referência unicamente às concentrações do ^{222}Rn . De acordo com o CODAMA, as águas serão consideradas não radioativas, se apresentarem concentrações de radônio inferiores a 66,6 Bq/L; fracamente radioativas, se apresentarem concentrações de radônio entre 66,6 e 134 Bq/L, radioativas se apresentarem concentrações entre 134 e 672,7Bq/L e fortemente radioativas para concentrações

superiores a 672,7 Bq/L.

Quando o ^{222}Rn é transportado pela água nos sistemas de abastecimento público, pode ocorrer sua ingestão junto com a água, o que ocasiona exposição ao sistema digestivo, ou sua inalação quando a água é utilizada em atividades domésticas, causando assim exposição ao sistema respiratório⁹.

Em decorrência da sua grande capacidade de emanção, as atividades do radônio nas águas superficiais são geralmente muito baixas, contrastando com águas subterrâneas que têm concentrações bem superiores. Nos trabalhos realizados pela USEPA no programa denominado "National Inorganics Radionuclides Survey" (NIRS)⁵⁰, em fontes de abastecimento de água nos Estados Unidos, foi observada uma faixa bastante ampla para as concentrações deste nuclídeo, variando desde 0 até mais de 10^3 Bq/L. As águas superficiais que são utilizadas por 49,5% da população têm uma concentração média de 0,3 Bq/L, enquanto os poços públicos que abastecem 32,2% da população apresentam concentração média de 5,2 Bq/L. As maiores concentrações são encontradas em poços privados que servem a 18,3% da população, com uma concentração média de 36 Bq/L.

Estudos epidemiológicos têm claramente estabelecido que a exposição pela inalação de radônio e seus descendentes

provoca câncer de pulmão. Avaliações estatísticas na população de trabalhadores de minas de urânio nos Estados Unidos, Canadá, antiga Checoslováquia e Suécia, envolvendo diferentes tipos étnicos, hábitos alimentares e condições de trabalho mostraram fatores de risco com uma incerteza inferior a uma ordem de grandeza. Os dados comprovam uma relação linear entre a exposição e a resposta ao dano biológico. Esses valores têm sido comparados e comprovados por meio de análise em laboratório com animais submetidos a inalação de radônio. O acréscimo da incidência de câncer também é verificado em decorrência da exposição de radônio nas residências⁵¹.

Quando o radônio é inalado, o órgão alvo é o pulmão e a exposição é decorrente principalmente dos seus descendentes; ao ser ingerido, o órgão alvo é estômago e a exposição é basicamente decorrente do radônio.

Os riscos de radônio e seus descendentes presentes no meio ambiente têm sido estudados pela USEPA usando modelos padrão com extrapolações lineares entre a razão de dose e o dano biológico sob as condições de minas de urânio. Foi estimado que, para uma concentração de aproximadamente 0,02 WL (Working Level), ocorrem de 1000 a 3000 mortes de câncer de pulmão para 100000 de pessoas. A unidade Working Level corresponde a qualquer combinação de concentração dos descendentes de meia-vida curta do ^{222}Rn em um 1 L de ar ,que

resulte na emissão de $1,3 \times 10^5$ MeV de partículas alfa, quando ocorre o decaimento total destes radionuclídeos⁴².

Os níveis de radônio medidos no ar das residências nos Estados Unidos são positivamente correlacionados com as concentrações de radônio nos suprimentos de água e também é verificado que ocorre o incremento de 39,6 mBq Rn/L no ar por 370 Bq/L Rn na água⁵².

Exposições prolongadas por inalação de radônio em ratos e cachorros comprovaram o aumento da incidência de câncer, embora não se tenha verificado um limiar para estas exposições. Porém, as análises quantitativas indicam que o risco é positivamente correlacionado com a exposição total, a diminuição da razão de exposição, o crescimento da fração não agregada dos descendentes de meia-vida curta do ^{222}Rn e a diminuição do fator de equilíbrio⁵³.

Vários trabalhos têm se dedicado à determinação das concentrações do radônio transportadas por meio dos suprimentos de abastecimento público de água e os efeitos biológicos no ser humano. COTHERN⁵⁴, coletando dados sobre a exposição ao radônio devida ao consumo de água potável, estimou que, para um período de vida de 70 anos (expectativa de vida dos Estados Unidos), ocorrem de 2000 a 40000 casos fatais de câncer de pulmão causados pela inalação do nuclídeo liberado naturalmente de depósitos de água pública. Ainda

segundo ele, a concentração média de radônio nestes suprimentos de água gera um risco de vida de 1 em 10000.

SUOMELA et al.⁵⁵ estimaram a dose de corpo inteiro em voluntários que ingeriram determinada quantidade de radônio em água. Neste estudo, os autores utilizaram para a radiação alfa, um fator de qualidade igual a 10. Os resultados obtidos indicaram uma dose de $0,65 \times 10^{-4}$ mSv/Bq ^{222}Rn quando o estômago estava cheio e de 1,02 mSv/Bq ^{222}Rn , quando o estômago estava vazio. Por outro lado, Anderson⁵⁶, estudando águas potáveis da Suécia, fez estimativas da dose em indivíduos que ingeriram altas concentrações de ^{222}Rn . Para tanto, analisou a incorporação do ^{222}Rn e seus descendentes, em dois indivíduos que ingeriram água natural contendo $2,55 \times 10^6$ Bq de ^{222}Rn . A partir da meia vida biológica do Rn, estimou a dose de corpo inteiro recebida, encontrando a dose de 1 mSv/semana.

HURSH et al.⁵⁷ identificaram que a parede do estômago é a parte do corpo que recebe a maior dose quando o radônio é ingerido com a água e que somente 1% deste radônio ingerido decai no corpo. Assim, os descendentes do radônio de meia vida curta não contribuem de maneira significativa. O radônio, ao ser ingerido, é absorvido pelo intestino, passando para a corrente sanguínea e sendo transportado aos pulmões, onde é exalado com uma meia vida biológica entre 30 e 50 minutos.

Trabalho realizado por CRAWFORD et al.⁵⁸, utilizando modelos bio-cinéticos para a ingestão de radônio na água, encontrou que a probabilidade de câncer fatal, principalmente no estômago, durante a vida, ingerindo água com a concentração de 37 mBq/L, é de 1×10^{-6} , com uma faixa de incerteza de 2×10^{-7} a 5×10^{-6} . Nessas condições, a concentração para um excesso de risco admissível de 10^{-4} é de aproximadamente 3700 mBq/L. Este valor, segundo levantamento da NIRS⁵⁰, é excedido em um substancial número de sistemas de abastecimento de água dos EUA.

3 REGIÃO URANO-FOSFÁTICA DO NORDESTE: "Aspectos Gerais"

Nos trabalhos realizados por Duarte et al⁵⁹., em 1949, com testemunhos de sondagem das camadas calcáreas, referentes à região sedimentar costeira do estado de Pernambuco, foram observados altos teores de fosfato. Estas observações foram o ponto de partida para a descoberta das possanças de fosfatos marinhos no nordeste do Brasil. Em decorrência da importância econômica dessa descoberta, pesquisadores da divisão de mineralogia do Departamento Nacional de Produção Mineral(DNPM) constituíram uma equipe juntamente com os descobridores dos depósitos de fosforita, com a finalidade de executar o levantamento para avaliar a extensão e os teores desses depósitos fosfóricos⁶⁰.

Atualmente, os depósitos de fosforita da região urano-fosfática do Nordeste do Brasil (denominação adotada pela ocorrência de urânio associado ao fosfato) estão bem delimitados e se localizam na faixa sedimentar costeira, estendendo-se do sul do estado de Pernambuco até o extremo norte do estado da Paraíba. Nesses depósitos, o teor de P_2O_5 varia desde valores inferiores a 10% nas proximidades do mar, crescendo lentamente na direção oeste, até chegar a valores superiores a 10% numa região denominada de "fosfato rico".

Esta região, que, segundo relatório técnico da CNEN/DNPM⁶¹, tem uma largura média de 4 km, é apresentada na figura 3.1.

O fosfato do NE deve ter sido originado de restos orgânicos fósseis, acumulados na zona basal, com um longo tempo de sedimentação⁶². A figura 3.2 mostra a coluna estratigráfica da região do fosfato, o qual se encontra na base da formação Gramame, sobrepondo-se à formação Itamaracá. Os afloramentos do fosfato são raros e a espessura dessa ocorrência varia desde decímetros até quase 4 metros. Na figura 3.3 é destacada a matriz fosfática. No sentido descendente encontram-se as argilas com pintas de fosfato, fosfato muito argiloso, fosfato argiloso, fosfato, fosfato arenoso, arenito com fosfato e arenito friável continental.

Devido ao alto teor de P_2O_5 , com um valor médio de 22%, a fosforita do NE tem sido explorada para a produção de fertilizantes⁶³. A extração, primeira fase do processo de produção do fertilizante, é feita a céu aberto, por meio da remoção da camada superior estéril e do descarte do fosfato pobre, cujo teor é inferior a 10%. Após essa fase de extração é feita a recomposição do solo, aproveitando-se o material retirado. O teor de U_3O_8 associado a este fosfato, segundo trabalho de Saad⁶, varia de 150 a 300 ppm. A presença do urânio na fosforita decorre, segundo trabalho de Fourati e Faludi⁷, provavelmente, da sua lixiviação e posterior

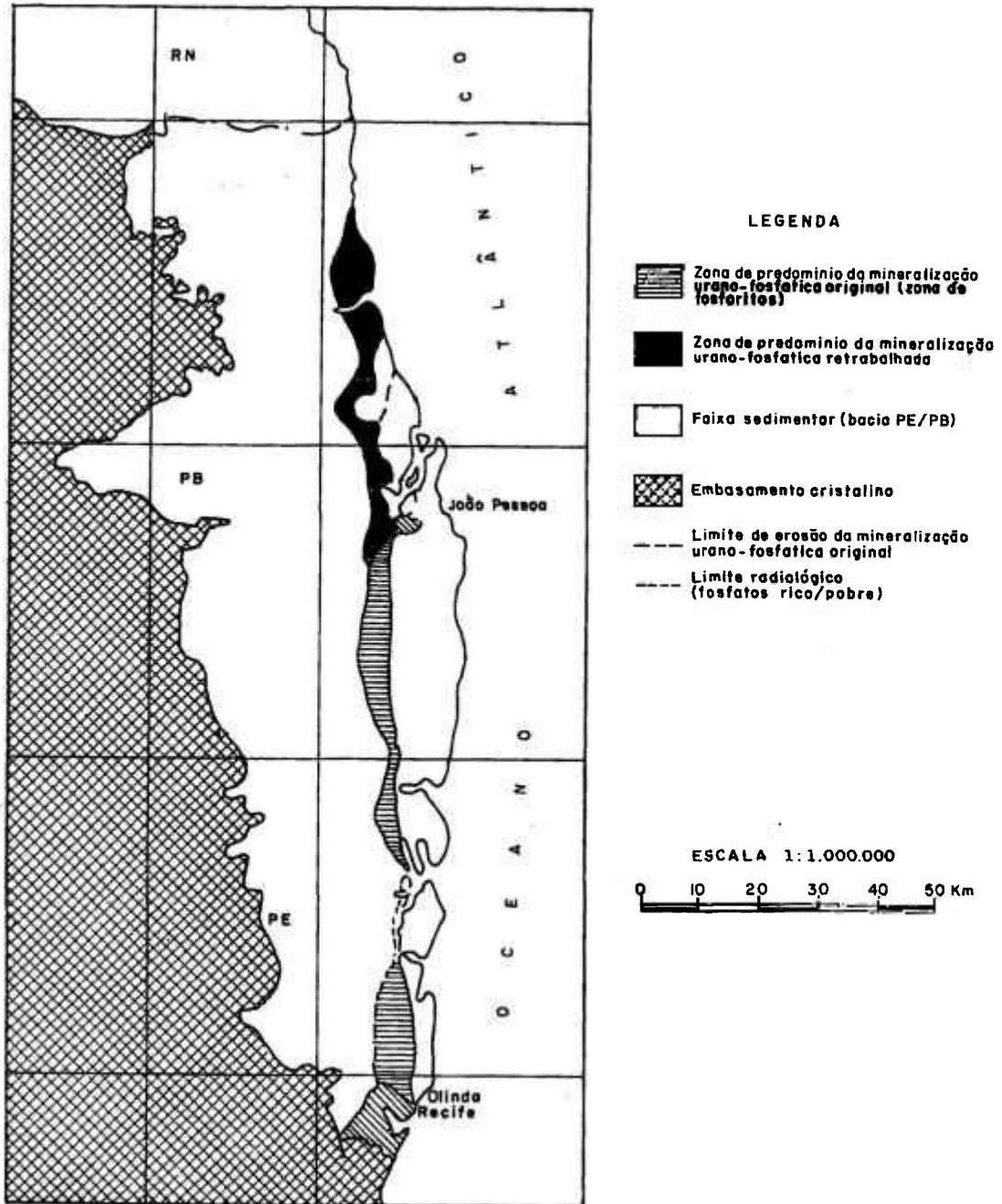


Figura 3.1 Região do fosfato rico no nordeste do Brasil



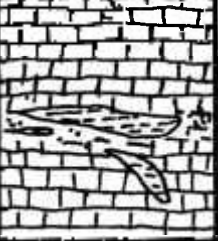
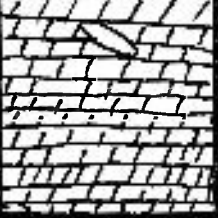
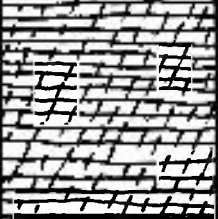


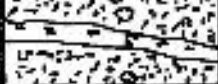
COLUNA ESTRATIGRÁFICA			FAIXA SEDIMENTAR COSTEIRA PE / PB	
Formação	Membro	Coluna	Ambiente Gerador	Radioat. Média em C.P.S.
Várzea Praias Dunas	Arenoso Argiloso		Depósitos de várzea, terraços fluviais, dunas e praias	50 - 60
Barreiras	Argiloso e Arenoso		—	70 - 80
Maria Farinha	Calcífero		Deposição marinha em águas de salinidade normal. Calcários de origem química e biológica	—
Gramame	Calcífero		Plataforma de relevo plano, recoberto por mar transgressivo de águas quentes	120 - 140
	Fosfática		Profundidades reduzidas e condições ecológicas favoráveis a vida animal	1.000
Itamaraca	Itapissuma		Depósito continental de água doce ou salobra	50 - 120
	Congo		Plataforma continental (marinha)	—
Beberibe	—		Continental	50

Figura 3.2 Coluna estratigráfica da região costeira do nordeste do Brasil

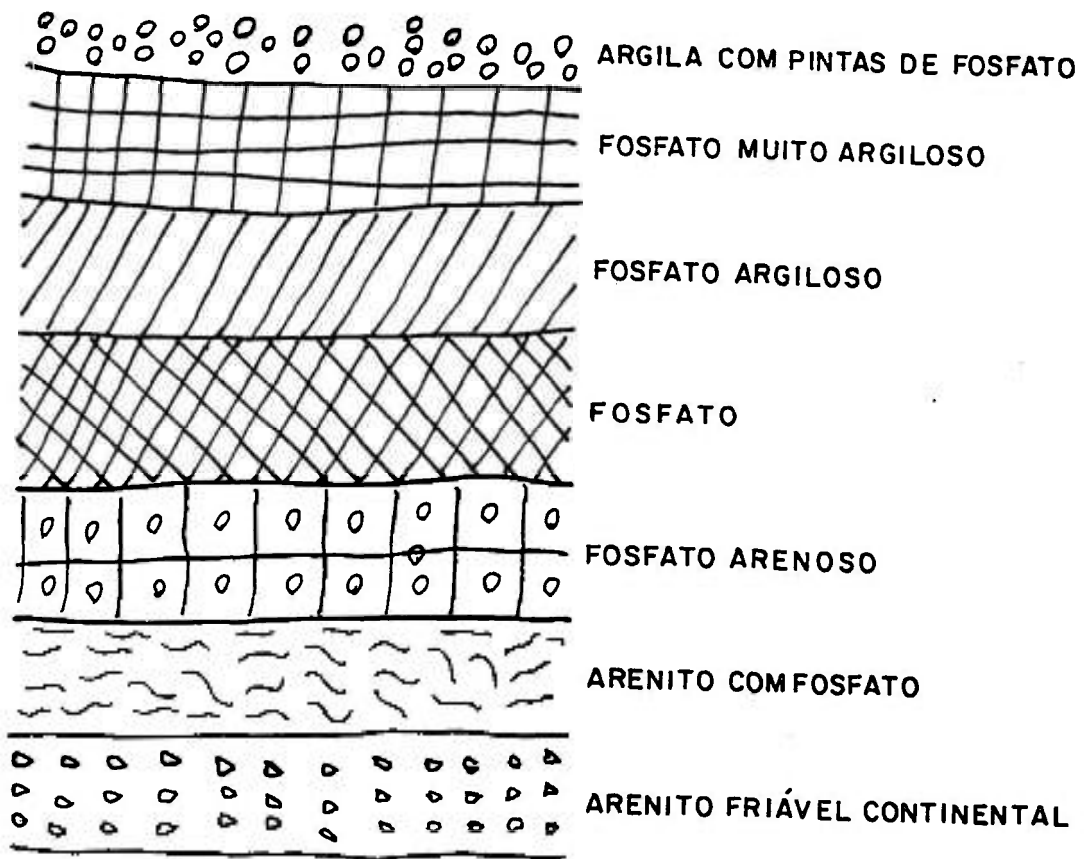


Figura 3.3 Corte de uma matriz fosfática no sentido vertical da região fosfática do nordeste do Brasil

deposição, no mineral, por processo de substituição do Ca^{2+} pelo UO_2^{2+} , ambos presentes nos minerais fosfáticos. Os trabalhos de Saad⁵ mostraram que a correlação entre os teores de P_2O_5 e de U_3O_8 , presentes na fosforita do Nordeste, é positiva, o que comprova a hipótese de substituição do Ca^{2+} pelo UO_2^{2+} , indicando que a deposição do urânio obedece ao mesmo ritmo de deposição do fosfato.

Estudos comparativos com outras ocorrências mundiais de fosfato mostram que a fosforita do NE apresenta um dos mais altos teores de urânio encontrados nestes minérios⁶⁴, como mostrado na tabela 3.1.

Tabela 3.1 - Concentração de urânio nos fosfatos de rocha mundialmente estudadas e sua comparação com a fosforita do Nordeste

PAÍSES	CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO $\mu\text{g/g}$
TUNÍSIA	32 - 47
ARGÉLIA	110-132
JORDÂNIA	105-149
ISRAEL	120-140
EUA (FLÓRIDA)	150-200
MARROCOS	155-160
BRASIL (NORDESTE)	150-300

A região costeira sedimentar do Nordeste, onde estão localizados os depósitos de fosfato, é bastante rica em recursos hídricos, tanto de origem superficial como de origem subterrânea. Os aquíferos superficiais constituídos pelos rios, riachos, lagos e fontes naturais, são encontrados em grande quantidade ao longo de toda a região fosfática. A recarga desses aquíferos é feita através da alimentação superficial direta das precipitações pluviais ou então pelo escoamento dos aquíferos subterrâneos.

Nas camadas superpostas da bacia sedimentar (figura 3.4) estão localizados três aquíferos subterrâneos⁶⁵: na primeira camada inferior encontra-se o aquífero denominado Beberibe, que é limitado, na base, pelo substrato cristalino e, no topo, por camadas semi-impermeáveis, da formação Beberibe. O segundo aquífero, na ordem ascendente, denomina-se Beberibe superior. É limitado, na base, pelas camadas semi-impermeáveis da formação Beberibe e, na parte superior, pelos calcários da formação Gramame ou pelos sedimentos da formação Barreiras. Esses dois aquíferos são considerados semi-confinados e suas recargas se processam por infiltração das águas das chuvas nas regiões de recarga, ou por fugas de um aquífero para outro. O terceiro, um aquífero livre, sem denominação própria, é limitado unicamente, na base, pelas camadas impermeáveis superiores, podendo ser encontrado tanto acima como abaixo das jazidas de fosfato.

A população da região utiliza preferencialmente os recursos hídricos subterrâneos. A captação de água dos aquíferos semi-confinados só é possível através de poços tubulares, o que restringe a sua utilização. Por outro lado, a captação do aquífero superior pode ser feita através de escavações bem menos onerosas. Por esta razão, são encontradas diversas unidades de captação abastecendo isoladamente casas e sítios.

O clima em toda a faixa litorânea onde se encontra a região fosfática, enquadra-se no tipo climático As' no sistema de Köppen, ou seja, quente e úmido com chuvas no

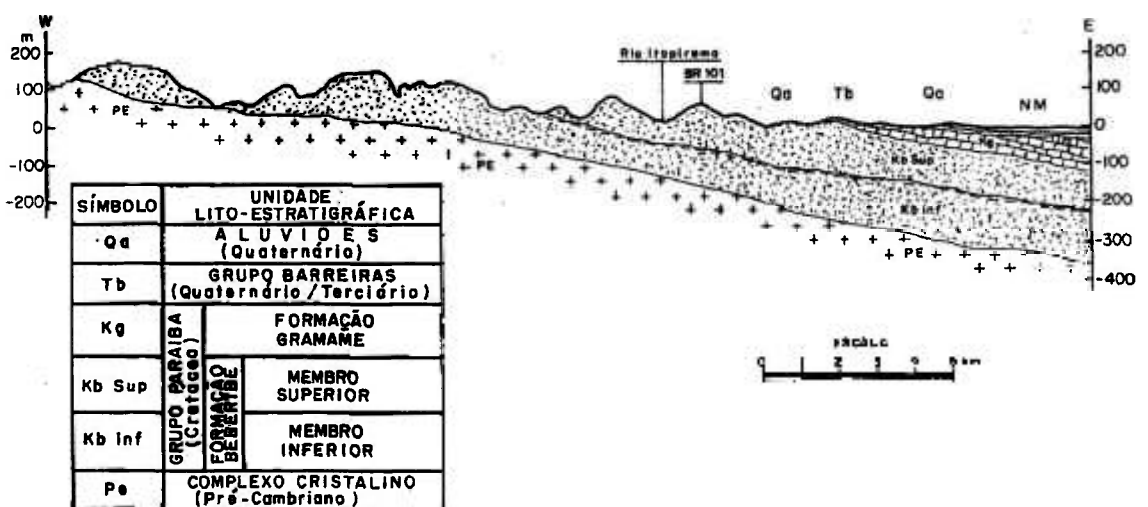


Figura 3.4 Corte transversal da bacia sedimentar costeira PE.

período de outono-inverno, mais concentradas nos meses de maio e junho. A precipitação pluviométrica média anual registrada é da ordem de 1990 mm. Os meses mais secos são outubro, novembro e dezembro. A diferença de temperatura entre inverno e verão é insignificante, podendo dizer-se mesmo que não há estações definidas com relação a este fator. Durante o ano, os valores mantêm-se elevados, com médias anuais de 24,8 °C. A umidade relativa do ar é elevada, apresentando valores médios anuais da ordem de 82,9%^{66,67}.

A densidade demográfica⁶⁸ da região é bastante elevada; mesmo excluindo os centros urbanos, os valores são sempre superiores a 100 habitantes/km².

A cultura da cana-de-açúcar representa a principal atividade agrícola e constitui a base econômica da região⁶⁶. Grandes unidades agro-industriais sucroalcooleiras estão implantadas na região, ocupando vastas áreas e aplicando tecnologias avançadas de manuseio de solo. Outras atividades agrícolas de menor importância econômica são desenvolvidas, como a fruticultura (banana, caju, manga e mamão) e horticultura (milho, feijão, verduras, tubérculos e raízes)⁶⁹.

Em decorrência do clima, a pecuária é pouco desenvolvida, restringindo-se à criação de pequenos animais domésticos e gado para produção leiteira em consumo local⁷⁰.

4 MÉTODOS DE ANÁLISE DO URÂNIO, ^{226}Ra e ^{222}Rn

Os métodos de análise considerados a seguir para a determinação do urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn têm os seus limites de detecção compatíveis com as concentrações dos radionuclídeos encontrados no meio ambiente.

Estes limites de detecção correspondem a valores aproximados de 1 $\mu\text{g U/kg}$ para o urânio, de 3,7 mBq/L para o ^{226}Ra e de 370 mBq/L para o ^{222}Rn . As concentrações inferiores a esses valores podem ser determinadas por meio de procedimentos adicionais, como concentração da amostra por evaporação e precipitação ou mesmo a utilização de maiores quantidades do material a ser analisado. Estes procedimentos podem modificar as características dos métodos diminuindo sua precisão, pois introduzem novas fontes de erros.

4.1 Métodos de determinação do urânio

4.1.1 Fluorimetria

O método de fluorimetria^{71,72} consiste na extração do urânio por meio de um extrator orgânico, seguido de sua fusão em pastilhas de compostos químicos e posterior leitura de sua

intensidade de fluorescência em um fluorímetro. A intensidade de fluorescência é proporcional à concentração de urânio presente nas amostras. Este método permite a determinação da ordem de 10^{-10} gramas de urânio e a sua tolerância à presença de elementos que provocam interferência ou "quenching" é tão elevada que raramente se faz necessária a purificação das amostras. A extração do urânio, utilizando solventes orgânicos, foi estudada por Bower et al.⁷³, os quais selecionaram o TOPO (óxido Tri-octilfosfina), por apresentar características superiores às dos demais solventes estudados. Estes autores também observaram que a presença de íons fosfatos nas amostras analisadas reduzia a eficiência de extração do TOPO. Esta interferência podia ser eliminada por meio da adição de íons de alumínio. No mesmo sentido, trabalhos realizados por Barrios et al.⁷⁴ verificaram que esta interferência também pode ser eliminada pela adição de íons de nitrato às amostras em estudo.

Para formação das pastilhas nas quais o urânio é fundido, atualmente vêm sendo utilizados compostos com alta concentração de carbonatos ou compostos com alta concentração de fluoretos. Estudos realizados por Centanni et al.⁷⁵, mostraram que é possível obter uma mistura ideal, composta de fluoreto de sódio acrescido de uma pequena quantidade de fluoreto de lítio. Uma vez que a presença de lítio afeta bastante a leitura da fluorescência, os autores realizaram diversos ensaios para determinar a melhor concentração a ser

utilizada. Os resultados obtidos evidenciam que as concentrações variando de 1 a 3% de fluoreto de lítio fornecem a maior leitura de fluorescência. Baseados nesses dados, os referidos autores selecionaram a composição de 2% de LiF, com 98% de NaF, como composição ideal para fluorimetria.

Neste método, a sensibilidade de detecção de urânio em solução é de cerca 1 $\mu\text{g U/kg}$ e a precisão é de $\pm 5\%$.

4.1.2 Fluorimetria a laser

Na fluorimetria a laser⁷⁶, a excitação do urânio é feita por laser de nitrogênio, pulsado, com comprimento de onda de 337 nm. As amostras são preparadas sob forma de solução aquosa e a luminescência do urânio é captada na região de 470 a 540 nm.

A utilização de um agente fluorescente restringe a faixa útil de análise entre 0,05 e 100 ng U/g, com precisão e exatidão menores que 5%. Esta técnica apresenta baixa influência de íons interferentes, pois trabalha-se com soluções extremamente diluídas, diminuindo, portanto, o efeito das interferências. Estudos a respeito da viabilidade mostraram que o método é aplicável a amostras com concentrações de 1 a 100 $\mu\text{g/g}$ de urânio, com precisão de 9%, no nível de 1 $\mu\text{g/kg}$ e de 2%, para 100 $\mu\text{g/kg}$.

4.1.3 Técnica do registro de traços de fissão

Este método emprega os detectores de traços^{77,78}, cujo funcionamento baseia-se na determinação dos traços latentes produzidos em materiais isolantes, como mica e o polietileno, pela passagem de partículas carregadas pesadas. Esses traços correspondem ao dano produzido na estrutura do material detector ao longo da trajetória da partícula incidente. Mediante um ataque químico conveniente, pode-se revelar esses traços pela sua dissolução. O princípio de revelação consiste no fato de que a região danificada pela radiação é mais facilmente atacada pelo agente químico do que a região que não foi danificada. Formam-se pequenos orifícios, correspondentes à região danificada, os quais podem ser detectados por um microscópio óptico comum ou um microscópio eletrônico.

A técnica de traços pode ser utilizada para a determinação do teor de urânio em amostras líquidas e sólidas. Em ambos os casos, as amostras são bombardeadas com feixes de nêutrons e os fragmentos produzidos na reação de fissão provocam a formação de traços nos filmes de mica ou de polietileno colocados diretamente em contato com a amostra.

4.1.4 Análise por ativação com nêutrons térmicos

A determinação da concentração de urânio também pode ser realizada por meio da ativação das amostras com nêutrons térmicos. Com este método, obtém-se as concentrações de ^{235}U e do ^{238}U por intermédio dos produtos de fissão do ^{235}U e do ^{239}U ou $^{239}\text{Np}^{79}$.

Os produtos de fissão, sob condições padrão, são indicadores da concentração do ^{235}U . Por outro lado, o ^{239}Np apresenta várias emissões de raios gama que são indicadores da concentração do ^{238}U .

Este método, por não necessitar de separações químicas prévias, nem de purificações das amostras, fornece resultados rápidos, o que permite a análise diária de um grande número de amostras. A principal restrição do método é a necessidade de uma fonte de nêutrons com fluxo superior a 10^{10} nêutrons/cm².s, já que a quantidade de urânio está em nível ambiental. Ainda há o problema dos interferentes, pois ativa-se outros elementos presentes na amostra.

4.2 Método do precipitado para determinação do ^{226}Ra

Os métodos de análise de ^{226}Ra são baseados em suas propriedades físicas e químicas. Por ser um metal alcalino terroso, o rádio apresenta propriedades químicas semelhantes

às do bário, o que possibilita sua separação da solução por coprecipitação com sulfato de bário (BaSO_4)⁸⁰.

A determinação da atividade do precipitado pode ser realizada das seguintes maneiras:

- medida direta do precipitado na fase sólida
- dissolução do precipitado numa solução cintilante
- dissolução do precipitado e medida do radônio por emanção.

4.2.1 Medida na fase sólida

Para a determinação do $^{226}\text{Ra}^{80}$, utilizando o precipitado na fase sólida, pode ser empregada uma variedade de sistemas de contagens, uma vez que, na desintegração radioativa desse radionuclídeo e de seus descendentes, há emissão tanto de partículas alfa e beta, como de radiação gama. A determinação da atividade alfa é a mais adequada, uma vez que os radionuclídeos (rádio e seus descendentes) são, na maioria, emissores alfa.

A detecção da radiação α , proveniente do decaimento do ^{226}Ra pode ser realizada com um cintilador de $\text{ZnS}(\text{Ag})$ ou com um contador proporcional. Uma das principais desvantagens

deste método é a dificuldade em se determinar apenas a concentração do ^{226}Ra , uma vez que, na coprecipitação, isótopos de rádio (^{224}Ra e ^{228}Ra) também são coprecipitados juntos. Além disso, também pode ocorrer a perda de radônio na amostra, causando a diminuição da exatidão da medida. A atividade mínima detectável deste método⁸¹ é cerca de 37 mBq e a reprodutibilidade é de $\pm 10\%$.

4.2.2 Medida por cintilação

Outro método de determinação do ^{226}Ra é por meio da dissolução do precipitado em soluções cintiladoras. Neste método determina-se a radiação α total e a escolha de um solvente adequado para reduzir o efeito de extinção ("quenching") permite a determinação de concentrações de até 3,7 mBq/L. A simplicidade de execução, o tempo de análise e a retenção do ^{222}Rn nas amostras, são as principais vantagens deste método⁸².

4.2.3 Medida por emanção

O ^{226}Ra também pode ser determinado por meio da dissolução do precipitado e emanção do ^{222}Rn . Neste caso, o ^{226}Ra é analisado tomando-se como base as medidas do ^{222}Rn emanado da solução em um dado intervalo de tempo. Por ser um gás inerte, o Rn é facilmente retirado da solução através do borbulhamento da solução com hélio ou outro gás e

transferido, com uma eficiência em média de 98%, para células de Lucas, câmara de ionização ou filtro duplo⁸⁰.

Quando a transferência é feita para uma célula de Lucas, espera-se um tempo mínimo de 3 horas para que o equilíbrio radioativo seja atingido entre o Rn e seus descendentes. Após o equilíbrio, é realizada a contagem alfa total.

Este método é caracterizado por certas vantagens, como especificidade para determinação do ^{226}Ra , que é feita pela determinação a partir do seu filho ^{222}Rn , exatidão e sensibilidade. Por outro lado, não é um método conveniente para trabalho em campo, pois envolve manipulações químicas e etapas de crescimento e de transferência. Além disso, não é um método bem adaptado para rotina, pois em certas situações onde maior sensibilidade é requerida, é necessário deixar o Rn crescer até atingir o equilíbrio radioativo com o rádio, que ocorre em torno de 30 dias. Neste caso, pode ocorrer a perda do Rn por difusão nas paredes do recipiente ou então por fuga nas junções. A atividade mínima detectável é de aproximadamente 3,7 mBq e a reprodutibilidade é de $\pm 10\%$ ⁸¹.

Quando a transferência do Rn é realizada para uma câmara de ionização⁸⁰, a corrente de ionização é principalmente produzida pelas partículas alfa do ^{222}Rn , ^{218}Po e ^{214}Po , pois as partículas beta e a radiação gama contribuem

com menos de 1%. A atividade mínima detectável neste método é de 37 mBq com erro de $\pm 20\%$. Por causa da baixa amplitude dos pulsos produzidos na câmara de ionização, necessita-se de um sistema de alta amplificação, o que torna os equipamentos mais sofisticados, inviabilizando o seu uso em trabalhos de campo.

A concentração de ^{226}Ra pela emissão do Rn em solução aquosa, pode ser determinada, também, pelo método do filtro duplo. O método baseia-se na determinação da concentração do radônio pela atividade dos descendentes. Faz-se passar o radônio, através do arraste com gás, em um tubo metálico equipado em cada extremidade com um filtro de alta eficiência. O filtro de entrada remove todos os descendentes do radônio, permitindo, no tubo, somente a entrada do Rn junto com o gás de arraste. O radônio decai parcialmente no caminho entre os dois filtros, produzindo átomos de ^{218}Po . Uma parcela do ^{218}Po é então coletada no filtro de saída. Após um certo tempo, o filtro de saída é analisado em um contador proporcional.

A concentração do radônio é calculada por uma equação que leva em conta as dimensões do tubo, taxa de amostragem e de contagem e a fração de ^{218}Po que alcança o filtro de saída. A sensibilidade depende do tamanho do tubo, taxa de amostragem e tempo de amostragem.

4.3 Métodos de determinação do ^{222}Rn

4.3.1 Método do carvão ativado

Este método^{80,83} baseia-se na propriedade que tem o carvão ativado à temperatura ambiente de absorver o Rn com uma eficiência de aproximadamente 80%, aumentando esta eficiência na medida em que se reduz a temperatura. À temperatura de -80°C , com uma mistura de gelo seco e acetona, a eficiência de adsorção é superior a 99%, já que nessa temperatura o Rn se apresenta na fase sólida. Aquecendo o carvão ativado, pode-se medir a atividade colocando-se o tubo diretamente no detector de iodeto de sódio e fazer a contagem gama ou pode-se transferir o Rn para uma célula de Lucas, aquecendo-se o tubo em torno de $400 - 500^{\circ}\text{C}$. Esse método é caracterizado pela alta sensibilidade, com a mínima atividade detectável em torno de $0,45 \text{ mBq}$ com grau de confiança de 95%. Além disso, é um método bastante estável que não precisa ser calibrado constantemente, por ser imune às condições ambientais.

Todos os métodos de determinação de Ra pela emissão de Rn podem ser utilizados para a determinação da concentração do Rn na água.

4.3.2 Método de cintilação líquida

Para a determinação da concentração de Rn em água, pelo método de cintilação líquida desenvolvido por PRICHARD e GESELL⁸⁴, uma alíquota da amostra de água e o líquido cintilante são colocados num mesmo recipiente, formando duas fases distintas. Como a solubilidade da fase cintilante é cerca de 50 vezes superior a da água, o radônio é transferido para esta fase facilmente, por meio de agitação, onde ocorrem os processos normais de cintilação.

O método é bastante simples e rápido, não requerendo nenhum tratamento prévio da amostra. O limite de detecção é de aproximadamente 370 mBq/L para um nível de confiança de 95%.

5 PROCEDIMENTO EXPERIMENTAL

5.1 Seleção da área de estudo

Como a região de abrangência das jazidas de fosfato é muito extensa, foi necessário, inicialmente, delimitar uma área para o desenvolvimento do estudo proposto. Foram adotados, como critérios para a seleção, a presença de cidades, vilas, sítios e indústrias e a ocorrência de recursos hídricos. Após a análise de diversos locais, foi escolhida e delimitada uma área de aproximadamente 40 km², cobrindo parte dos municípios de Paulista, Abreu e Lima, Cruz de Rebouças e Igarassu. A área escolhida está situada entre os paralelos 7°51'14"S e 7°55'19"S e os meridianos 34°52'03"W e 34°54'52"W (Figura 5.1).

Nesta área encontram-se algumas cidades, vilarejos e indústrias, que, além de serem localizadas sobre as jazidas, utilizam água do subsolo para diferentes fins. A região é muito rica em recursos hídricos superficiais e subterrâneos, sendo cortada pelos rios Timbó, Queimados e Desterro, além de vários córregos. Em locais mais afastados dos centros urbanos são encontrados vários sítios e fazendas, que utilizam sistemas próprios para captação de água.

5.2 Pontos de coleta

Como ponto de partida na área delimitada, realizou-se um levantamento para identificar pontos de coleta de água que fossem significativos para o desenvolvimento do trabalho. Tais pontos foram associados em três grupos, em função da origem das águas:

- pontos superficiais: referentes à coleta de rios, riachos e fontes (referência RS);
- pontos de poços do lençol freático: águas originadas do aquífero livre de pouca profundidade (6 a 12 metros) (referência PT);
- e pontos de poços tubulares, que captam água de aquíferos semi-confinados de grande profundidade (50 a 200 metros), existentes na formação Beberibe (referência PA).

Um total de 101 pontos de coleta foram selecionados para estabelecimento do trabalho. Desses, 13 foram de águas superficiais, 18 do aquífero semi-confinado e 70 do aquífero livre. Na figura 5.2 estão indicadas as posições desses pontos e no Anexo A estão relacionadas as localidades e posições geográficas dos mesmos.

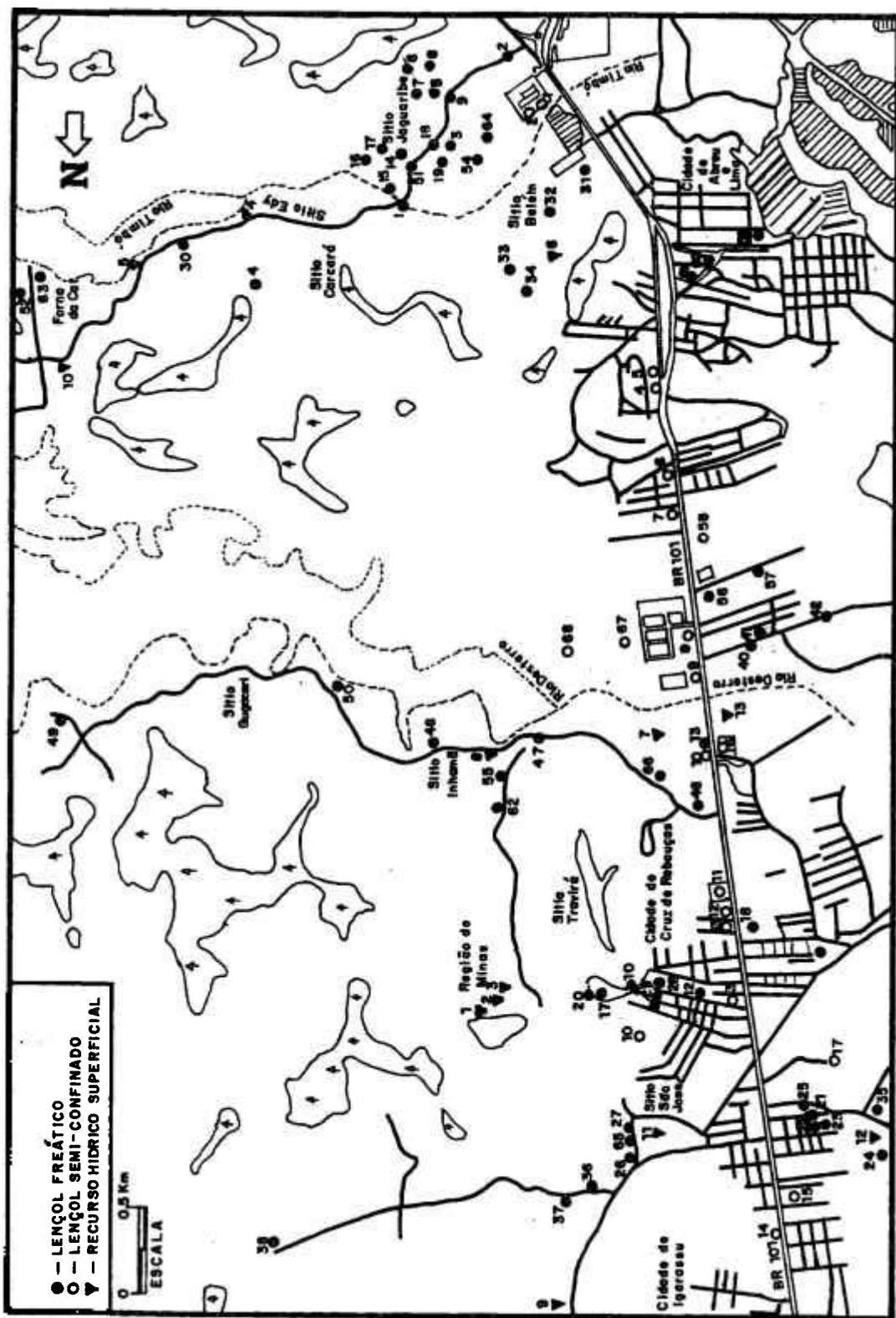


Figura 5.2 Pontos de coleta de água

5.3 Procedimentos de coleta

Para cada ponto selecionado foram realizadas pelo menos duas coletas, uma no período seco (setembro a março) e a outra, no período de chuvas (abril a agosto), durante três ciclos hidrológicos completos. As épocas de coleta foram programadas de acordo com estas duas condições climáticas características da região, com o objetivo de verificar uma possível variação nas concentrações de urânio ^{226}Ra e ^{222}Rn presentes nas águas.

As amostras para determinação das concentrações de urânio e ^{226}Ra foram coletadas em recipientes de polietileno com a capacidade de 5 L.

No laboratório, as amostras foram imediatamente aciduladas com ácido clorídrico concentrado (2 mL/L), para evitar a adsorção dos radionuclídeos nas paredes do recipiente. Para a determinação do urânio, uma alíquota do material foi concentrada por evaporação, com uma redução de volume de 1500 mL para 250 mL.

As coletas para determinação do ^{222}Rn foram realizadas com o próprio recipiente de cintilação de 25 mL, no qual havia sido colocado o líquido cintilante. Nessas coletas foram adotados os procedimentos recomendados pela Agência de Proteção Ambiental dos Estados Unidos (EPA)⁸⁵.

Para determinação dos parâmetros físico-químicos, as amostras foram coletadas em dois recipientes de polietileno com a capacidade de 2L. Um recipiente foi utilizado para a determinação imediata, ao chegar ao laboratório, do pH e da resistividade, parâmetros sujeitos a variações quando a água é retirada do seu meio. O outro recipiente foi utilizado para a determinação da alcalinidade e do resíduo seco e das concentrações de cálcio, sódio, potássio, magnésio, ferro carbonato, bicarbonato, ferro, sulfato, nitritos e cloreto.

5.4 Seleção dos métodos de determinação de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Ra

Para a determinação das concentrações dos radionuclídeos em estudo foi feita uma análise comparativa de cada método descrito anteriormente, levando em consideração o grau de dificuldade de execução, tempo e custo de análise, sensibilidade, exatidão e reprodutibilidade. Por estes critérios e dentro das disponibilidades do laboratório, foram escolhidos os seguintes métodos:

Determinação do Urânio: Método fluorimétrico^{71,75}

Determinação do ^{226}Ra : Método da emanção simples com transferência de Rn para células de Lucas e contagem alfa total^{80,81};

Determinação do ^{222}Rn : Método da cintilação líquida⁸⁴.

5.5 Procedimento de análise

5.5.1 Método fluorimétrico para determinação de urânio

Para determinação das concentrações do urânio foram utilizadas duas alíquotas de 20 mL de cada amostra de água concentrada por evaporação, colocadas em recipientes de polietileno para a extração do urânio. Como branco de leitura, foram colocados, em recipientes idênticos, 20 mL de água destilada. Em seguida, foram adicionados em cada recipiente 1 mL de solução saturada de nitrato de alumínio e 1 ml do extrator orgânico TOPO (óxido tri-n-octil-fosfina). Os recipientes foram agitados mecanicamente durante 10 minutos e colocados em repouso por 1 hora, para que todo o urânio contido na amostra fosse extraído e concentrado na fase orgânica em suspensão. Simultaneamente foram preparadas pastilhas de uma mistura contendo 2% de fluoreto de lítio e 98% de fluoreto de sódio, pesando aproximadamente 300 mg, as quais foram colocadas em cadinhos de platina. Após uma hora em repouso, retirou-se de cada amostra 100 μL do material em suspensão e transferiu-se esta alíquota para a pastilha de LiF/NaF . Para reduzir o erro na preparação das amostras,

foram produzidas ao mesmo tempo e nas mesmas condições de tratamento, duas pastilhas para cada amostra.

As pastilhas contendo urânio, além de um cadinho vazio, utilizado para zerar o sistema de leitura, foram colocadas em um forno a 1000 °C, durante seis minutos, formando-se, então, o fluoreto de urânio. Depois da fusão, os cadinhos foram levados a uma estufa (150 °C), para que ocorresse o resfriamento. A fim de reduzir a influência do procedimento de resfriamento nas medidas, as leituras foram efetuadas somente depois de decorrido um tempo mínimo de uma hora após a fusão. Este intervalo foi determinado com base nos trabalhos de Centanni et al.⁷⁵, os quais mostraram que a intensidade de fluorescência aumenta somente nos primeiros 15 minutos da fusão, permanecendo, depois, constante.

Após o resfriamento, os cadinhos foram levados a um fluorímetro, modelo Jarrel-Ash-27-000, onde foram efetuadas as leituras.

Para cada pastilha foram efetuadas quatro leituras, de modo que a concentração de urânio, em cada amostra, era obtida a partir da média das oito leituras efetuadas nas duas pastilhas. Desta forma, eram minimizados tanto os erros decorrentes da preparação da amostra, como os devidos a flutuações estatísticas nas leituras.

Para construir a curva de calibração, foram preparados padrões de urânio com concentrações pré-determinadas. Destes, foram retiradas duas alíquotas de 20 mL cada, submetidas ao procedimento normal de fluorimetria já descrito. Com as leituras, foi construída a curva de calibração, para determinar a corrente produzida em função das concentrações de urânio de cada amostra. Foi adotado nos cálculos o fator de conversão de massa em atividade do urânio natural, que corresponde a 24,79 mBq/ μ g U.

5.5.2 Método de emanção do radônio

Para determinação das concentração do ^{226}Ra foi utilizado 1 L da amostra coletada, a qual foram adicionados 20 ml de HCL (12N) e 1 mL de carregador de bário, aquecendo-se a solução até a ebulição. A esta solução foram adicionadas, lentamente e com agitação vigorosa, 20 mL de H_2SO_4 (18N). A solução foi mantida sob agitação por mais 7 minutos e deixada em repouso durante, pelo menos, 10 horas. Após este período o sobrenadante foi descartado e o precipitado centrifugado a 500 rpm durante 5 minutos, o sobrenadante residual foi novamente descartado. Ao precipitado final obtido foram adicionados 20 mL de solução de EDTA e 2 mL de solução de NH_4OH , aquecendo-se o material em banho-maria até sua total dissolução, sendo o volume reduzido a aproximadamente 15 mL. A solução foi transferida para um borbulhador processando-se sua limpeza pela passagem

de ar comprimido envelhecido por cerca de 20 minutos. Concluída a limpeza, o borbulhador foi fechado para dar início ao crescimento do ^{222}Rn . Após um tempo mínimo de 8 dias para que fosse obtida uma atividade superior a 75% da atividade de equilíbrio⁸⁰, o ^{222}Rn produzido pelo decaimento do ^{226}Ra foi extraído do borbulhador e armazenado em uma célula de Lucas para que entrasse em equilíbrio com seus descendentes e fosse realizada a contagem alfa total.

A contagem foi realizada acoplando a célula de Lucas ao fotocátodo de uma fotomultiplicadora conectada a um sistema eletrônico modular convencional com pré-amplificador, amplificador, discriminador e contador com temporizador. A figura 5.3 mostra o sistema de emanção e a célula de Lucas.

A concentração C de ^{226}Ra foi determinada pela seguinte relação:

$$C = \frac{(R_e - R_b)}{R_c} \cdot \frac{1}{(1 - e^{-\lambda t_1})} \cdot \frac{1}{e^{-\lambda t_2}} \cdot \frac{\lambda t_3}{(1 - e^{-\lambda t_3})} \quad (5.1)$$

onde:

R_e = taxa de contagem observada na amostra (cpm) ;

R_b = taxa de radiação de fundo observada na célula de cintilação (cpm);

R_c = constante de calibração em eficiência da célula de cintilação do Rn com seus descendentes;

λ = constante do decaimento do radônio (dias);

t_1 = intervalo de tempo para o crescimento do radônio no borbulhador (dias);

t_2 = intervalo de tempo entre a emissão e o início da contagem (dias);

t_3 = tempo de contagem (dias);

$\frac{1}{(1 - e^{-\lambda t_1})}$ - fator de correção para o crescimento do Rn no tempo t_1 .

$\frac{1}{e^{-\lambda t_2}}$ - fator de correção para decaimento do Rn no tempo t_2 .

$\frac{\lambda t_3}{(1 - e^{-\lambda t_3})}$ - fator de correção da atividade do Rn pelo decaimento durante a contagem no tempo t_3 .

O cálculo da constante de calibração foi feito com amostras padrões de Ra e utilizando o mesmo procedimento de preparação das amostras de água.

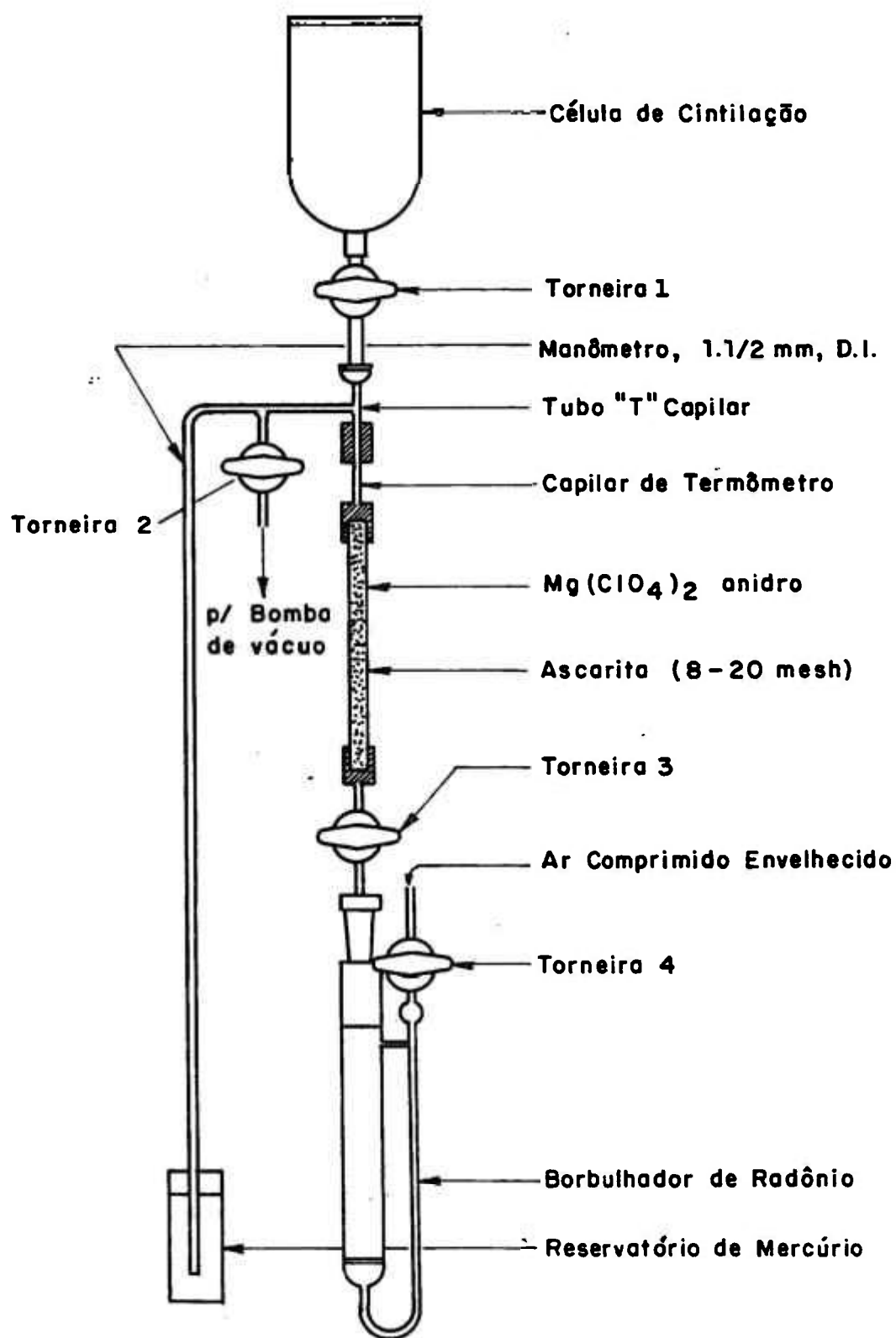


Figura 5.3 Sistema de emanção e célula de Lucas

5.5.3 Método de cintilação para determinação do ^{222}Rn

Para a determinação do ^{222}Rn dissolvido nas amostras de água, colocou-se inicialmente 12 mL de um coquetel cintilador em um recipiente de cintilação de 25 mL; este coquetel foi previamente preparado na proporção de 1 L de xileno para 7 g de 2,5 difeniloxazol (PPO) e 0,75 g de 2,2 -p Fenilen bis - (5 - feniloxazol) (POPOP)⁸⁶. No local de coleta retirou-se, com uma seringa, 12 mL da amostra, que foram transferidos para o recipiente contendo o cintilador, o qual foi imediatamente fechado e agitado vigorosamente. Após a agitação, foi esperado 3 horas para que ocorresse o crescimento dos descendentes do radônio⁸⁴. Decorrido este tempo, determinou-se a taxa de contagem num cintilador líquido Beckman LS 1701.

A concentração C do ^{222}Rn foi determinada por:

$$C = \frac{R_s - R_b}{V \cdot E \cdot e^{-\lambda t}} \quad (5.2)$$

R_s - taxa de contagem da amostra;

R_b - taxa de contagem da radiação de fundo;

V - volume da amostra;

E - constante de calibração.

λ - constante de decaimento do ^{222}Rn ;

t - intervalo de tempo entre a coleta da amostra e a metade do tempo de contagem.

A constante de calibração foi determinada pela seguinte expressão:

$$E = \frac{R_P - R_B}{A_P} \quad (5.3)$$

onde,

R_P - taxa de contagem do padrão;

R_B - taxa de contagem da radiação de fundo;

A_P - concentração do padrão.

A constante de calibração foi determinada a partir de uma solução padrão de ^{226}Ra , utilizando-se o mesmo procedimento de preparação das amostras. Após a injeção da solução de rádio no recipiente de cintilação, deixou-se o ^{222}Rn entrar em equilíbrio radioativo com o ^{226}Ra para realizar a contagem no cintilador líquido.

5.6 Metodologia de avaliação da dose e estimativa do risco

A radiação causada pela ocorrência natural de radionuclídeos ou pela descarga de materiais radioativos no meio ambiente, em decorrência de atividades industriais, pode atingir o homem por diversas vias de exposição. A figura 5.4 mostra esquematicamente o transporte e assimilação dos contaminantes radioativos no meio ambiente e suas possíveis vias de exposição ao homem.

Tem sido objetivo de órgãos governamentais de proteção radiológica^{2,3,12,13} a determinação da exposição e a estimativa de risco na população de áreas de elevado nível de radioatividade natural ou de áreas sujeitas a um aumento significativo de radioatividade, em decorrência principalmente de atividades de mineração de urânio ou fosfato. A população que vive nestas áreas está sendo submetida a altas doses pela entrada dos radionuclídeos no ecossistema e posterior transferência destes ao homem.

Os radionuclídeos presentes no meio ambiente podem provocar exposições externas e internas (fig.5.4). As exposições externas são decorrentes dos radionuclídeos presentes no meio ambiente cujas radiações atingem o homem e as internas são devidas aos radionuclídeos biologicamente presentes no corpo ou incorporados via inalação ou ingestão de alimentos e água. A distribuição desses radionuclídeos no

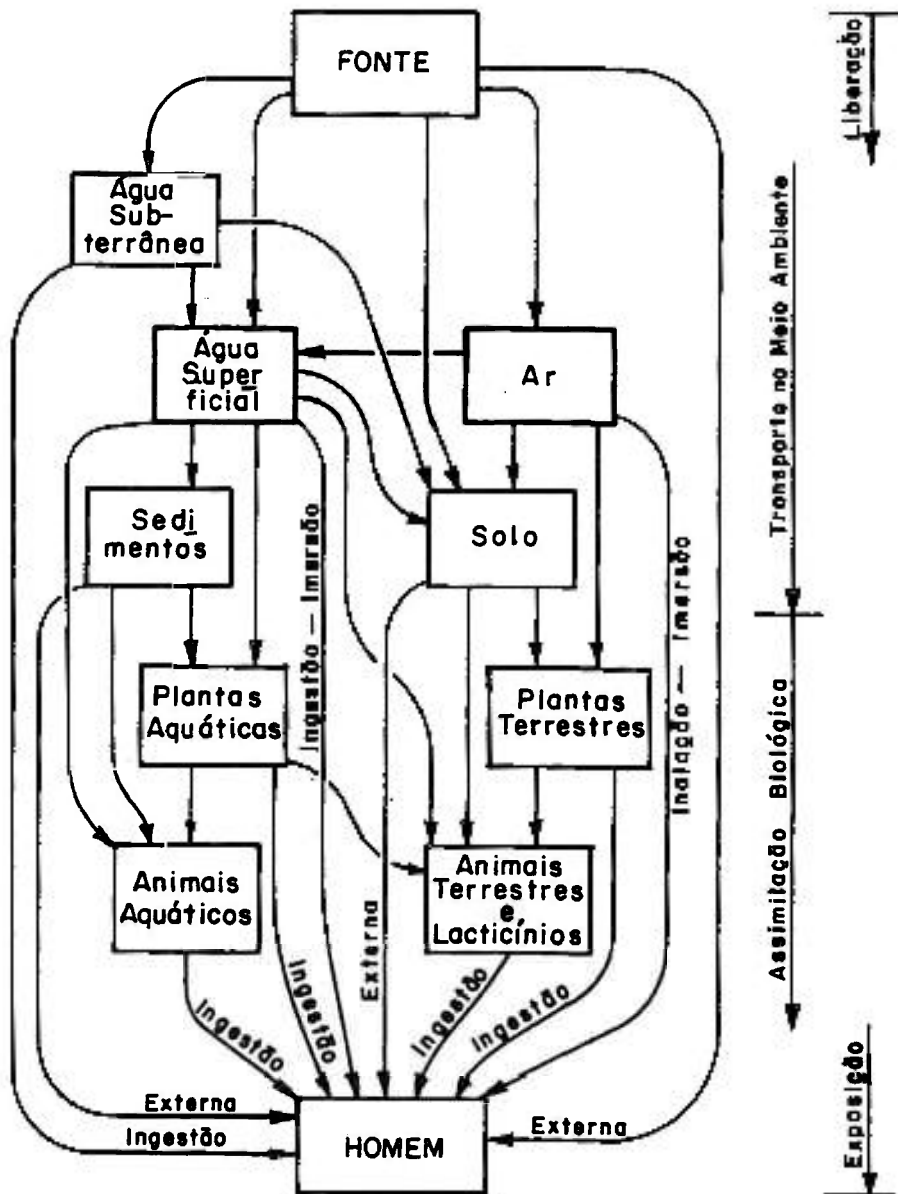


Figura 5.4 Transporte e assimilação dos contaminantes radioativos no meio ambiente e a exposição ao homem

corpo é determinada pelas suas propriedades físico-químicas e seu comportamento biocinético. Em algumas partes, como nos ossos, os radionuclídeos podem permanecer por longo período de tempo, e em outras, podem passar um período relativamente curto. O tempo para eliminar metade da concentração presente é denominado meia vida biológica, o qual depende do radioisótopo e pode variar de minutos a anos.

Os dois caminhos para caracterizar a exposição são a dose nos órgãos de deposição e a dose de corpo inteiro. Quando se trata de exposição interna, o radioisótopo ao ser ingerido migra preferencialmente para um determinado órgão. Como a sensibilidade à radiação é diferente para os diversos órgãos, a dose admissível para todo o corpo é numericamente diferente da dose admissível para um órgão individualmente.

Modelos dosimétricos têm sido desenvolvidos para determinar a dose em cada parte do corpo e o subsequente dano biológico causado. No estudo com modelos, o corpo é subdividido em compartimentos e um conjunto de equações diferenciais descreve a absorção e eliminação em função do tempo de permanência dos radionuclídeos nesses compartimentos. O modelo gastrointestinal⁸⁷ e o modelo biocinético do radônio⁸⁸ são modelos importantes para descrever o comportamento dos radionuclídeos quando da ingestão de água. O primeiro modelo é usado para a análise geral da ingestão de radionuclídeos enquanto o segundo é

usado unicamente na análise da ingestão de radônio dissolvido na água.

O modelo gastrointestinal detalhado na ICRP⁸⁷, divide o sistema em quatro compartimentos: estômago, intestino delgado, intestino grosso superior e intestino grosso inferior. Este modelo descreve o comportamento dos radionuclídeos no sangue e nos órgãos. Uma meia-vida biológica é associada a cada compartimento. Na análise são consideradas também outras variáveis, tais como: composição química do isótopo, análise dos produtos do decaimento em relação à radioatividade e toxicidade e a idade da pessoa envolvida.

No modelo biocinético⁸⁸ para a determinação da dose devida à ingestão do radônio presente na água, o corpo é dividido em compartimentos segundo mostra o esquema da fig. 5.5. A cada compartimento é associada uma taxa de dose em função do tempo inicial da ingestão do radônio. Esses parâmetros foram inicialmente determinados por meio da ingestão de ^{133}Xe , que decai para um elemento estável e admitindo seu comportamento no corpo como semelhante ao do radônio⁸⁸.

A relação entre a dose recebida e o efeito produzido em determinado indivíduo exposto à radiação é um problema complexo que ainda não tem uma definição precisa, face às

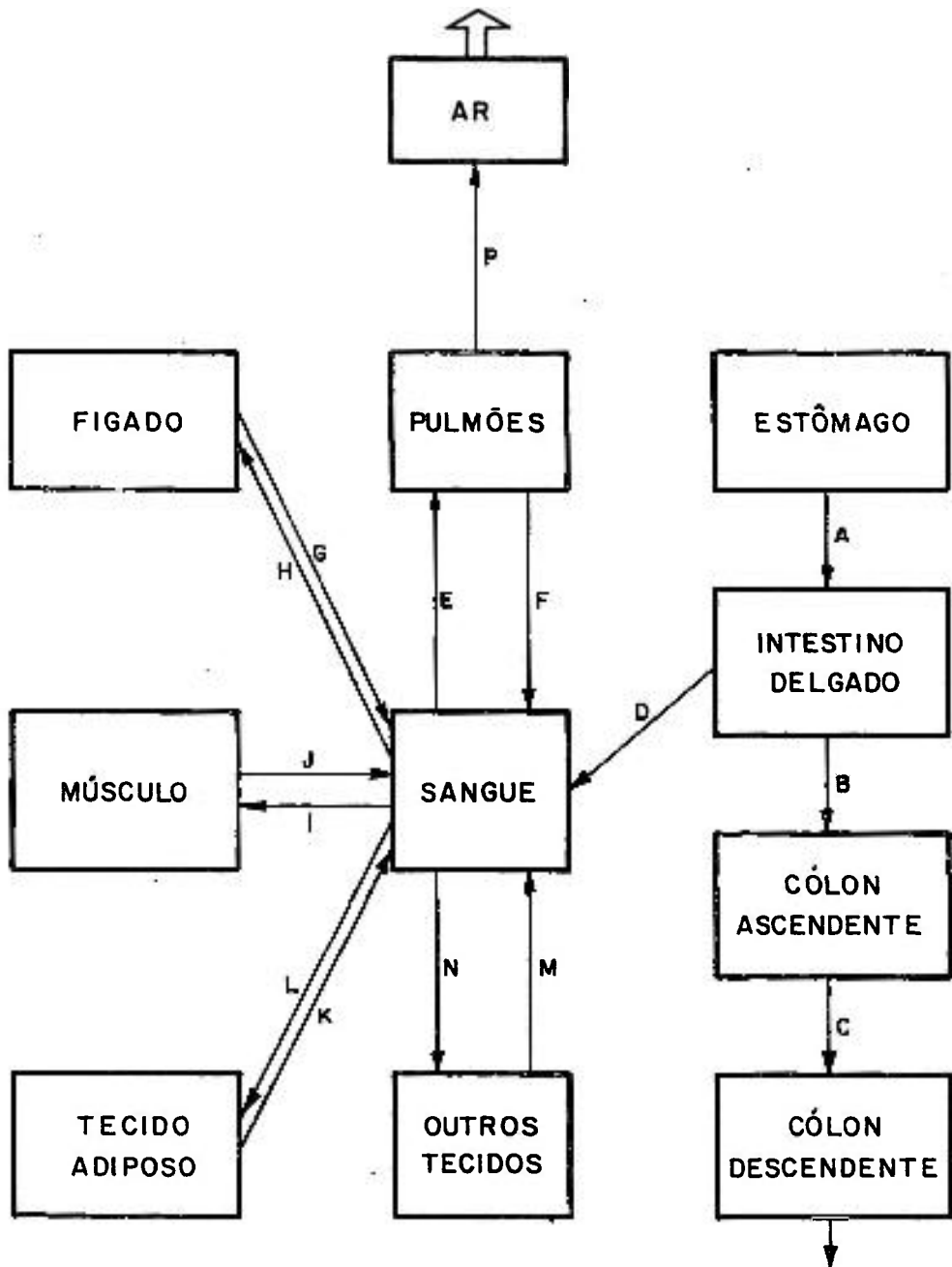


Figura 5.5 Modelo biocinético para ingestão do radônio

incertezas associadas entre a dose recebida e a resposta biológica. Por esta razão, torna-se necessária a obtenção de dados que permitam relacionar a dose recebida com o efeito nos seres humanos. Por razões morais, não é possível expor deliberadamente o homem. Assim o estudo depende das informações experimentais com animais ou de estudos epidemiológicos de grupos da população, que, por razões circunstanciais, foram submetidos à radiação. Em ambos os casos, existem dificuldades intrínsecas em se obter as correlações entre a dose e o efeito biológico⁸⁹.

Na realidade , numa primeira abordagem, não se pode garantir que os efeitos nos seres humanos sejam os mesmos que nos animais. O fato de admitir que os comportamentos são semelhantes pode levar a resultados não realistas. O efeito não pode ser simplesmente previsto pela proporcionalidade do peso; diferenças biológicas entre ambos impedem uma previsão exata nos seres humanos baseada nos efeitos em animais. Apesar disto, os danos biológicos causados pela radiação ionizante são atualmente melhor conhecidos do que os de muitos poluentes industriais. Contudo, é necessário ter em mente que os efeitos não podem ser determinados de maneira segura e definitiva por meio do estudo com animais. Um exemplo deste problema é a avaliação realizada com os sobreviventes das bombas de Hiroshima e Nagasaki. A incidência de mutações genéticas nos descendentes dos

sobreviventes foi bem menor do que o previsto, baseado em estudos com animais⁴².

Por outro lado, a determinação dos efeitos nos seres humanos, por estudos epidemiológicos, é distorcida pelas incertezas das informações. Os atestados de óbito incompletos, imprecisões no preenchimento da "causa mortis", as doses recebidas, que geralmente não são bem conhecidas, são os principais problemas para a avaliação.

5.6.1 Quantificação da exposição à radiação

A Comissão Internacional de Proteção Radiológica (ICRP) e a Comissão Internacional de Unidade e Medidas Radiológicas (ICRU) são as organizações internacionais reconhecidas para estabelecer normas de segurança e limites máximos admissíveis de exposição à radiação, bem como sistemas coerentes de unidades de medida capazes de avaliar danos biológicos provocados pela radiação⁹⁰.

As principais grandezas de medidas das radiações utilizadas no presente trabalho estão definidas no anexo B.

5.6.2 Estimativa do risco

A base da avaliação do risco da exposição à radiação tem se fundamentado no estudo epidemiológico de grupos de

peçoas que, por razões específicas, são submetidas de maneira similar à exposição de determinados radionúclídeos. Vale salientar neste caso o estudo nos grupos dos trabalhadores de minas que são submetidos à exposição do radônio e seus descendentes, dos sobreviventes das explosões nucleares de Hiroshima e Nagasaki, dos pacientes submetidos ao tratamento com medicamentos à base de ^{224}Ra ou dos que utilizaram o dióxido de tório como contraste nas radiografias do fígado e do baço e mais recentemente nos sobreviventes do acidente de Chernobyl. No caso específico da análise epidemiológica do risco decorrente da exposição do ^{226}Ra , o principal grupo de estudo foi constituído por aproximadamente 2940 pessoas, compreendendo mulheres que trabalhavam como pintoras de mostradores de relógio, utilizando tintas à base de rádio, no início deste século^{28,91}.

O dano biológico de maior importância, correspondente a doses baixas e médias devidas à incorporação interna do rádio, é o aumento de câncer nos ossos. No caso das trabalhadoras das fábricas de relógio foi constatado um aumento significativo dos casos de sarcoma nos ossos e de carcinoma de crânio²⁸.

Recentemente, as análises dos dados com este grupo de pessoas foram direcionadas no sentido de estabelecer relações entre doses e efeitos biológicos em baixas exposições. Neste

sentido May e col.²⁸ e Rowland e col⁹¹. estabeleceram correlações lineares entre a dose e o dano biológico.

5.6.2.1 Risco acumulado para indução de carcinoma de crânio

Para calcular a taxa de incidência de carcinoma de crânio, devido à assimilação do ^{226}Ra no sangue, ROWLAND et al.⁹¹ 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:

$$IA_c = 4,32 \times 10^{-10} D_c \quad (\text{carcinoma de crânio/pessoa-ano}) \quad (5.4)$$

onde

IA_c = excesso de incidência anual de carcinoma de crânio;

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

Admitindo uma expectativa de vida de 65 anos⁹², 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 tumores²⁴.

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

$$D_c = A \times B \times T_1 \quad (5.5)$$

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 tem-se:

$$TM_c = (0 + IA_c) / 2 \quad (\text{carcinoma de crânio/pessoa-ano}) \quad (5.6)$$

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

$$RC_c = TM_c \times T_1 \quad (5.7)$$

5.6.2.2 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 exponencial²⁸:

$$IA_o = 1,9 \times 10^{-10} D_o^2 e^{-0,0011D_o} \text{ (sarcoma de osso/pessoa-ano)} \quad (5.8)$$

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 (5.8) 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 aproxima-se rapidamente de zero.

Segundo ROWLAND et al.⁹¹ o ajuste mais aceitável para o risco de sarcoma de osso, devido à acumulação de pequenas quantidades de rádio será:

$$IA_o = 2,7 \times 10^{-10} D_o \text{ (sarcoma de osso/pessoa-ano)} \quad (5.9)$$

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, teremos⁹¹:

$$D_o = A \times B \times T_2 \quad (5.10)$$

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_o) segue o mesmo critério da equação (5.6):

$$TM_o = (0 + IA_o) / 2 \quad (5.11)$$

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

$$RC_o = TM_o \times T_2 \quad (5.12)$$

No presente trabalho foi adotado o valor de 21% para a absorção gastrointestinal do ^{226}Ra . Esse valor foi

determinado pela U. S. Environmental Protection Agency (USEPA)³⁸, seguindo metodologia apresentada na (ICRP-26)⁹³.

5.7 Determinação dos parâmetros físico-químicos

As análises para determinação dos parâmetros físico-químicos foram realizadas no Laboratório de Análises de Água da Superintendência do Desenvolvimento do Nordeste (SUDENE). O laboratório possui um manual de procedimento próprio que segue as normas da APHA (American Public Health Association) e/ou AWWA (American Water Works Association)⁹⁴.

As seguinte análises foram feitas:

CÁLCIO

A determinação do Ca foi feita por titulação com EDTA 0,04N e utilizando murexida como indicador.

MAGNÉSIO

As análises de Mg foram realizadas por titulação com EDTA 0,04N utilizando negro de criocromo como indicador.

CLORETO

A determinação do Cl foi feita por titulação com nitrato de prata (AgNO_3) utilizando cromato de potássio como indicador.

CARBONATOS E BICARBONATOS

Os teores de HCO_3^- e $\text{HCO}_3^- \text{OH}$ foram determinados também por titulação com H_2SO_4 0,04N, utilizando indicador misto (fenolftaleína + alaranjado de metila).

ALCALINIDADE

A alcalinidade é decorrente da presença dos bicarbonatos, carbonatos ou hidróxidos. A determinação foi feita por titulação utilizando indicador alaranjado de metila.

DUREZA

A dureza foi classificada pelos íons metálicos de cálcio e magnésio expressos em termos de CaCO_3 .

NITRATOS

Os nitratos foram determinados qualitativamente com ácido sulfanílico concentrado e alfa-naftilamina. O aparecimento de uma coloração amarela indica a presença de nitratos.

As seguintes determinações foram feitas por análise instrumental:

SÓDIO E POTÁSSIO

As determinações de Na e K foram realizadas por fotometria de chama.

FERRO

A determinação de Fe foi feita por absorção atômica.

SULFATO E NITRITOS

A determinação de SO_4 e dos nitritos foi realizada por espectrofotometria.

Os resultados das análises dos parâmetros físico-químicos das águas da região urano-fosfática do nordeste do Brasil são mostrados no Anexo C.

6 RESULTADOS E DISCUSSÃO

6.1 Avaliação dos métodos de medida

6.1.1 Método fluorimétrico

A concentração de urânio de cada amostra, determinada pelo método fluorimétrico, foi obtida a partir da média de oito medidas, efetuadas em duas pastilhas, preparadas com processos distintos de extração do urânio. Este procedimento foi adotado para minimizar os erros decorrentes do processo de extração e das flutuações estatísticas das leituras.

No método fluorimétrico a leitura no fluorímetro corresponde à corrente produzida na fotomultiplicadora em decorrência da incidência dos fótons emitidos no processo de fluorescência do urânio. Existe uma proporcionalidade entre as concentrações de urânio nas amostras e a corrente produzida na fotomultiplicadora. Para obter esta relação foi necessário traçar inicialmente as curvas de calibração do fluorímetro.

Para a faixa de concentração encontrada nas águas da região em estudo, foi necessário utilizar somente as duas primeiras escalas do fluorímetro, que atingem até uma

corrente máxima de 10 μA para uma concentração de até 285 mBq/L de urânio, quando adotados os procedimentos de análise descritos no capítulo 5. As curvas de calibração das duas escalas são mostrada na figura 6.1.

Nestes gráficos estão representados os valores médios das leituras e a reta traçada foi obtida a partir do tratamento estatístico pelo método dos mínimos quadrados.

A precisão e a exatidão na determinação de urânio foram verificadas periodicamente, utilizando-se padrões da USEPA, por intermédio de um programa de intercomparação coordenado pelo IRD/CNEN. Os valores médios para a precisão e exatidão foram respectivamente 7,7% e 9%. O limite de detecção foi calculado considerando o formalismo desenvolvido por Altshuler e Pasternack⁹⁵, obtendo-se o valor de 2,45 mBq/L para as amostras concentradas por evaporação.

6.1.2 Método de determinação do ^{226}Ra pela emissão do ^{222}Rn

As concentrações de ^{226}Ra , determinadas pelo método de emissão, foram obtidas considerando a média dos valores das precipitações de duas alíquotas de cada amostra. A eficiência total do método foi avaliada com soluções padrão de ^{226}Ra fornecidas pelo IRD/CNEN. Estas soluções foram submetidas ao

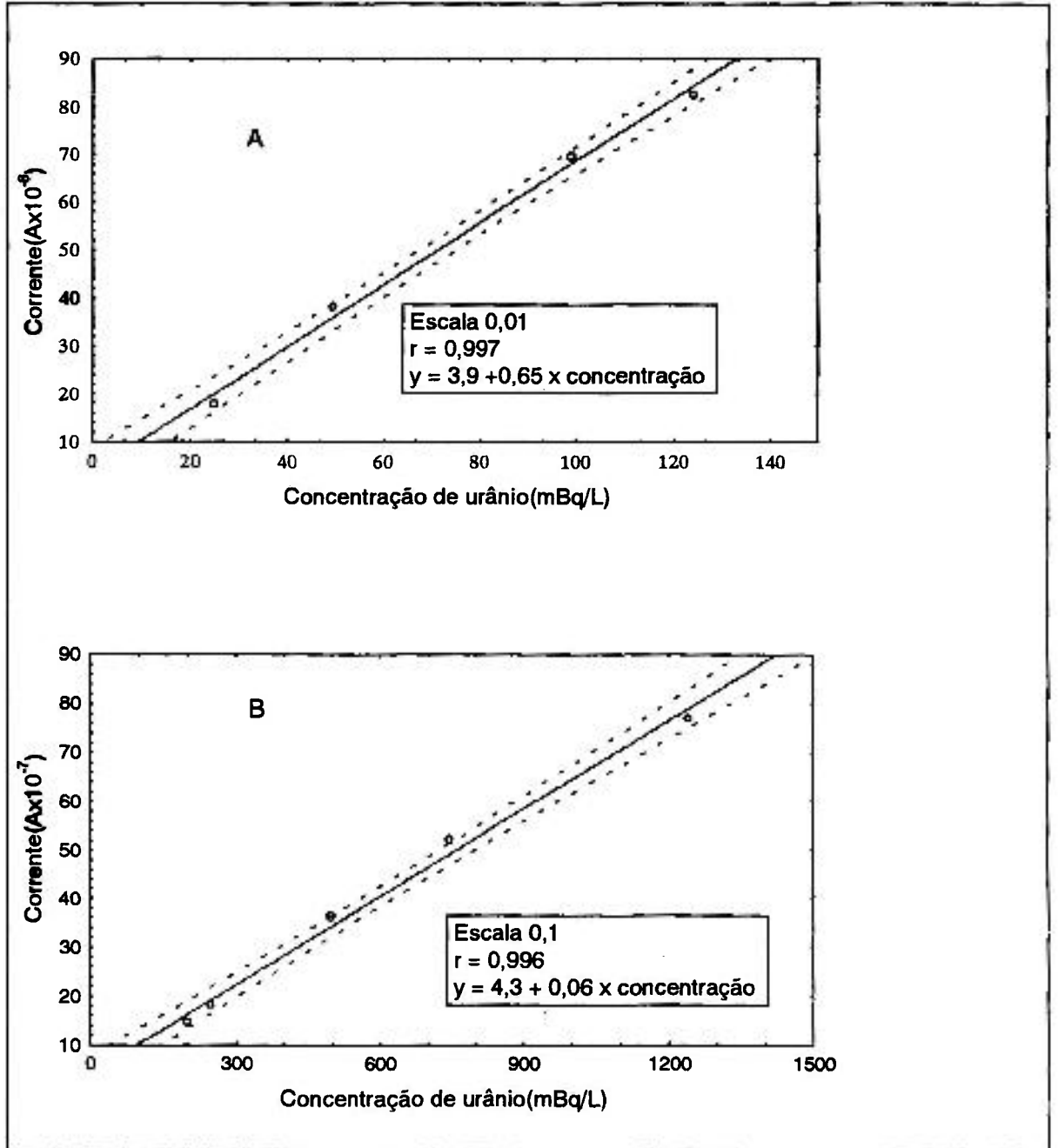


Figura 6.1 Curvas de calibração do fluorímetro para as escalas 0,01(A) e 0,1(B)

mesmo procedimento de análise das amostras e a eficiência total foi determinada para cada célula de Lucas. A faixa de variação da eficiência foi de 127 a 143 cpm/(Bq/L).

Os valores médios da precisão e exatidão, utilizando os padrões da USEPA, foram 4,4% e 4,9%, respectivamente e o limite de detecção de 3 mBq/L com o ruído de fundo de 75 cpm.

6.1.3 Método de cintilação líquida

O valor da concentração do ^{222}Rn foi determinado calculando a média das análises realizadas em três recipientes de cintilação, que foram preenchidos no próprio ponto de coleta. Este procedimento foi adotado para minimizar perdas do radônio que eventualmente ocorrem durante o transporte e manuseio da água coletada.

A eficiência do método foi determinada com padrões de ^{226}Ra fornecidos pelo IRD, colocados em recipientes de cintilação, por um período mínimo de 30 dias, para se estabelecer o equilíbrio radioativo com o radônio. Foi observado que a atividade final do padrão é cerca de 90% da atividade teórica esperada (figura 6.2). Isto é explicado pela fração de radônio que permanece na fase aquosa ou então é transferida para o volume vazio do recipiente de cintilação. A eficiência média obtida do sistema de cintilação foi de 276 cpm/Bq.

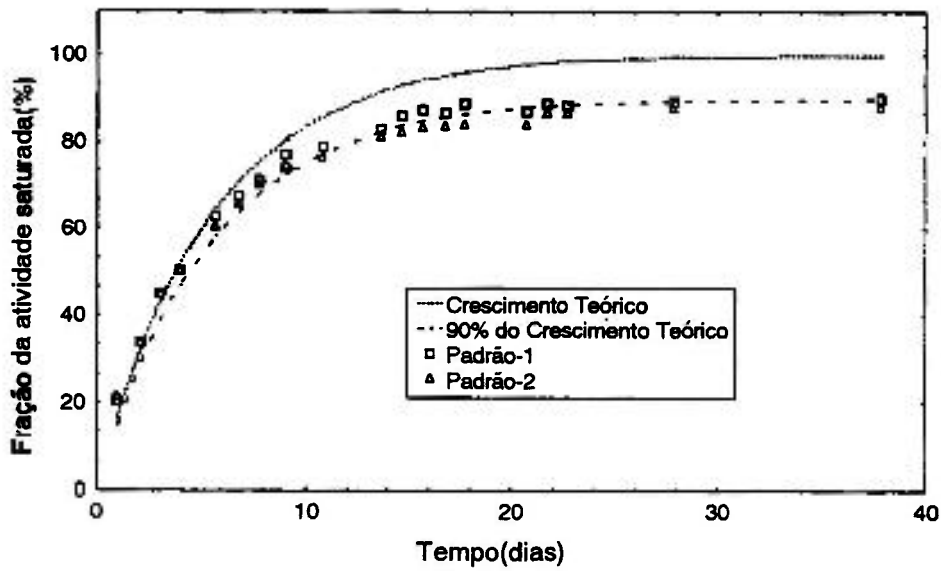


Figura 6.2 Crescimento do ^{222}Rn durante período mínimo de 30 dias até o estabelecimento do equilíbrio com ^{226}Ra

Devido às dificuldades intrínsecas de manuseio e transporte do radônio, não foi possível realizar a intercomparação de resultados para este método. Por esta razão, medidas adicionais foram adotadas para garantir a precisão e a exatidão das análises; em todas as baterias de contagem foram incluídos dois padrões, para comparações, no início e no final da série de amostras.

Testes periódicos de reprodutibilidade foram realizados com amostras coletadas no campo. As amostras eram medidas durante vários dias seguidos. Na figura 6.3, um destes testes mostra que todos os valores encontrados estão contidos no intervalo de confiança $x \pm 2s$, onde s é o desvio padrão dos dados.

A fim de verificar se os resultados apresentaram um comportamento não aleatório decorrente de alguma tendência do sistema de medida, foi aplicado o teste de Q^2 (coeficiente de divergência de Lexis)⁹⁶ na série de medidas repetidas. Os valores obtidos de Q^2 estão contidos dentro do intervalo de probabilidade de 10 a 90% evidenciando a não existência de variações sistemáticas.

A linearidade da resposta do sistema de cintilação líquida, em função da concentração da amostra, foi testada e comprovada até a concentração de 1800 Bq/L, como mostrada na figura 6.4.

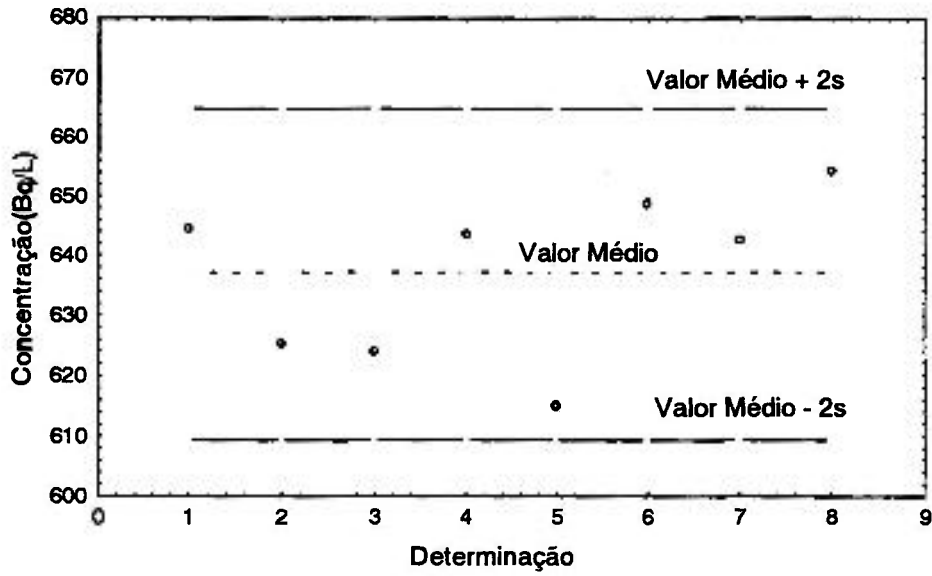


Figura 6.3 Teste de reprodutibilidade para amostras coletadas no campo

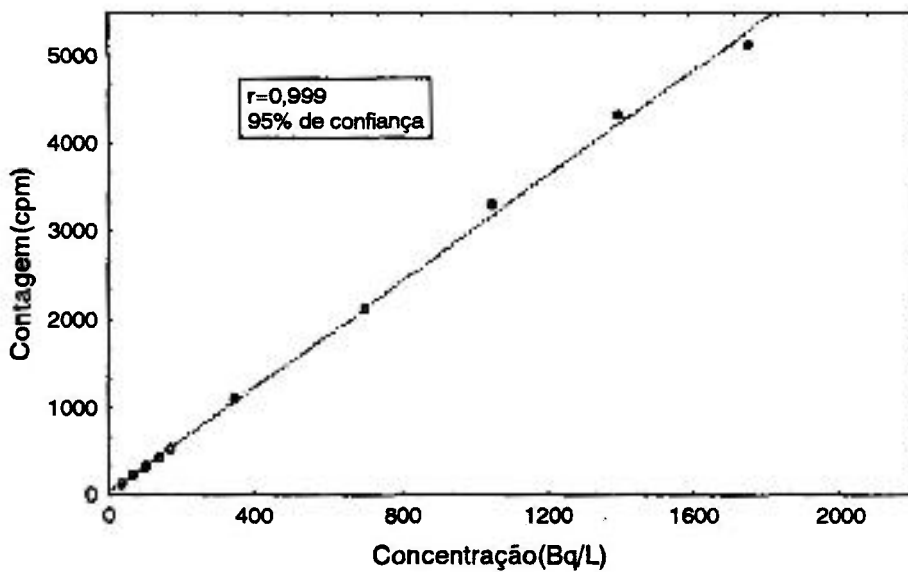


Figura 6.4 Teste de linearidade (concentração de radônio versus contagem)

Para possibilitar de maneira satisfatória a transferência do radônio da fase aquosa para a fase orgânica, é necessário o controle rigoroso da agitação da amostra antes de iniciar as medidas. Vários experimentos foram realizados, com agitação tanto mecânica como manual para verificar o efeito causado pela agitação no comportamento do crescimento da atividade no cintilador. Uma amostra pode ser considerada suficientemente agitada, quando as duas fases parecem constituir uma única fase. Nesta condição de agitação, a fase orgânica é constituída de pequenas gotículas, distribuídas na fase aquosa, o que aumenta a área de contato entre as duas fases e permite a aceleração da transferência do radônio da água para o líquido cintilante. Esta condição foi obtida com uma agitação manual durante um período de aproximadamente 1 minuto.

Na figura 6.5 é apresentado um caso de agitação satisfatória; a estabilização da contagem ocorre após 3 horas com o estabelecimento do equilíbrio do radônio e seus descendentes de meia vida curta na fase orgânica. Se uma nova agitação for realizada, haverá a necessidade da espera do mesmo tempo (3 horas); ao se agitar a amostra, ocorre a diminuição da contagem pelo deslocamento dos descendentes do radônio para a fase aquosa. Na figura 6.6 é mostrado o caso de uma agitação insuficiente; a estabilização ocorre após 40 horas, em nível inferior ao esperado.

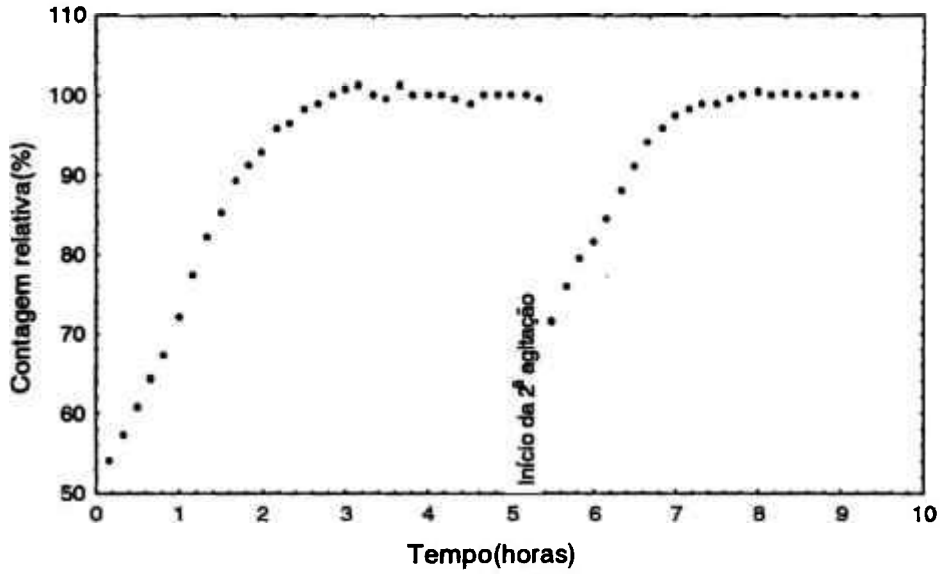


Figura 6.5 Efeito da agitação na transferência do radônio para o líquido cintilador.
(agitação satisfatória)

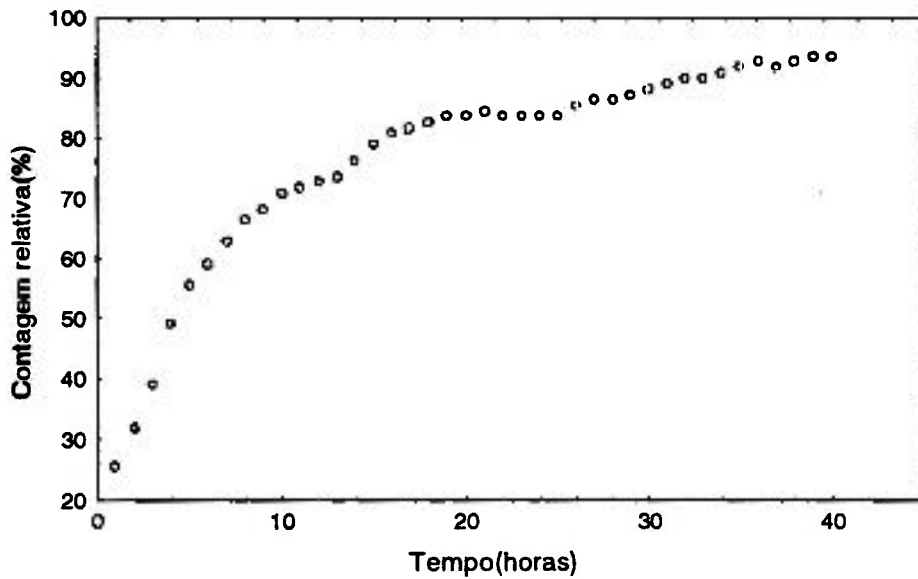


Figura 6.6 Efeito da agitação na transferência do radônio para o líquido cintilador
(agitação incompleta)

6.2. Concentração de urânio

Nas tabelas 6.1, 6.2 e 6.3 são mostrados os dados das concentrações de urânio das águas da região fosfática de Pernambuco, para os períodos de seca e de chuva e as suas correspondentes médias geométricas e aritméticas. Os pontos de coleta compreendem amostras de águas no lençol freático (PA), no lençol semi-confinado (PT) e em recursos hídricos superficiais (RS). Em alguns pontos a análise foi realizada somente em um único período; o impedimento no período seco foi ocasionado pelo rebaixamento do nível do lençol abaixo da profundidade do poço e no período de chuva pelo assoreamento do poço ocasionado pelo desmoronamento das paredes laterais.

Na análise dos dados verifica-se que existe uma larga variação de concentração de urânio. No lençol freático, a concentração máxima no período de seca foi de 229 mBq/L e o valor médio 21,7 mBq/L, no período de chuva a concentração máxima foi de 214,4 mBq/L e o valor médio de 24,1 mBq/L. No lençol semi-confinado os valores médios e máximos foram respectivamente 39,4 e 176,2 mBq/L para o período de seca e 43,0 e 187,5 mBq/L para o período de chuva. Os recursos hídricos superficiais apresentaram valores de 11,7 e 40 mBq/L para os valores médio e máximo para o período de seca e 11,3 e 50,9 mBq/L para o período de chuva.

Tabela 6.1 Valor da concentração de atividade de urânio das águas do lençol freático da região urano-fosfática do Nordeste do Brasil.

CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO (mBq/L)				
LOCAL	período	período	média	média
	de seca	de chuva	geométrica	aritmética
PA-01	3,28±0,34	3,80±0,13	3,53±0,19	3,54±0,18
PA-02	5,00±0,40	5,97±0,21	5,46±0,24	5,49±0,23
PA-03	7,28±0,71	ND	7,28 ± 0,71	7,28±0,71
PA-04	30,00±0,32	54,8±1,1	40,55±0,45	42,40±0,57
PA-05	4,01±0,22	3,59±0,20	3,79±0,15	3,80±0,15
PA-06	5,92±0,26	6,66±0,40	6,28±0,23	6,29±0,24
PA-07	4,55±0,32	2,83±0,31	3,59±0,23	3,69±0,22
PA-08	4,04±0,31	3,53±0,01	3,78±0,14	3,79±0,16
PA-09	11,25±0,62	15,29±0,54	13,12±0,43	13,27±0,41
PA-10	106,8±5,2	128,1±1,1	116,9±2,9	117,4±2,6
PA-11	13,63±0,42	15,26±0,32	14,44±0,27	14,47±0,26
PA-12	25,1±2,0	20,1±1,0	22,5±1,1	22,6±1,1
PA-13	2,57±0,10	1,39±0,11	1,89±0,08	1,98±0,07
PA-14	10,44±0,11	6,19±0,22	8,04±0,15	8,32±0,12
PA-15	3,57±0,16	3,77±0,41	3,67±0,22	3,67±0,22
PA-16	ND	4,32±0,12	4,32±0,12	4,32±0,12
PA-17	ND	9,67±0,17	9,67±0,17	9,67±0,17
PA-18	7,44±0,82	2,62±0,14	4,42±0,27	5,03±0,48
PA-19	3,95±0,53	5,31±0,24	4,58±0,32	4,63±0,29
PA-20	7,70±0,24	18,2±1,3	11,84±0,46	12,95±0,67
PA-21	1,97±0,41	4,04±0,58	2,82±0,36	3,01±0,36
PA-22	13,93±0,13	12,93±0,09	13,44±0,08	13,45±0,08
PA-23	7,19±0,22	8,56±0,39	7,85±0,22	7,88±0,22
PA-24	5,94±0,22	5,34±0,12	5,63±0,12	5,64±0,13
PA-25	24,25±0,92	24,44±0,23	24,34±0,48	24,35±0,47

Tabela 6.1 (Continuação)

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO (mBq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-26	15,73±0,48	15,60±0,18	15,66±0,26	15,67±0,26
PA-27	26,1±1,4	11,34±0,88	17,20±0,82	18,72±0,85
PA-28	178±19	145,0±2,7	160,6±8,7	161,5±9,6
PA-29	118,0±1,6	105,6±1,3	111,6±1,0	111,8±1,0
PA-30	2,97±0,34	2,93±0,01	2,95±0,17	2,95±0,17
PA-31	21,75±0,91	62,60±0,91	36,90±0,82	42,18±0,64
PA-32	2,52±0,11	6,26±0,37	3,97±0,15	4,39±0,19
PA-33	6,70±0,26	6,30±0,31	6,50±0,20	6,50±0,20
PA-34	12,6±1,2	10,66±0,41	11,58±0,60	11,62±0,63
PA-35	3,85±0,03	3,77±0,70	3,81±0,04	3,81±0,04
PA-36	41,12±0,73	48,6±1,6	44,70±0,82	44,86±0,87
PA-37	11,53±0,12	12,57±0,20	12,04±0,11	12,05±0,12
PA-38	14,02±0,62	14,96±0,14	14,48±0,33	14,49±0,32
PA-39	3,58±0,79	3,99±0,28	3,78±0,44	3,79±0,42
PA-40	7,37±0,50	8,22±0,20	7,78±0,28	7,80±0,27
PA-41	7,58±0,59	9,14±0,45	8,32±0,38	8,36±0,37
PA-42	7,84±0,60	5,23±0,11	6,40±0,25	6,54±0,31
PA-43	16,33±0,64	17,80±0,72	17,05±0,48	17,07±0,48
PA-44	4,27±0,22	5,78±0,39	4,97±0,21	5,03±0,22
PA-45	13,05±0,65	39,40±0,49	22,68±0,58	26,23±0,41
PA-46	8,49±0,70	16,54±0,76	11,85±0,56	12,52±0,52
PA-47	3,37±0,73	6,22±0,13	4,58±0,50	4,80±0,37
PA-48	13,92±0,32	22,45±0,26	17,68±0,23	18,19±0,21
PA-49	3,27±0,15	4,63±0,55	3,89±0,25	3,95±0,29
PA-50	11,8±2,2	12,45±0,47	12,1±1,2	12,1±1,2

Tabela 6.1 (Continuação)

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO (mBq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-51	6,11±0,17	5,90±0,47	6,00±0,25	6,01±0,25
PA-52	229±10	179,1±1,9	202,5±4,5	204,0±5,1
PA-53	2,13±0,19	2,97±0,34	2,52±0,18	2,55±0,19
PA-54	7,44±0,82	ND	7,44±0,82	7,44±0,82
PA-55	2,01±0,12	3,39±0,11	2,61±0,09	2,7±0,08
PA-56	10,51±0,10	7,25±0,14	8,73±0,09	8,88±0,09
PA-57	9,74±0,36	8,43±0,08	9,06±0,17	9,08±0,18
PA-58	10,46±0,07	17,95±0,85	13,70±0,33	14,21±0,43
PA-59	6,82±0,28	9,01±0,07	7,84±0,16	7,91±0,14
PA-60	5,91±0,11	4,73±0,06	5,29±0,06	5,32±0,06
PA-61	22,07±0,67	24,13±0,93	23,08±0,57	23,10±0,57
PA-62	78,9±1,8	88,3±2,6	83,5±1,6	83,6±1,6
PA-63	3,58±0,40	5,20±0,10	4,31±0,24	4,39±0,21
PA-64	3,49±0,19	2,09±0,07	2,70±0,09	2,79±0,10
PA-65	45,5±2,3	25,6±1,6	34,2±1,4	35,6±1,4
PA-66	19,57±0,50	47,9±1,2	30,6±0,55	33,7±0,65
PA-67	16,62±0,24	21,01±0,31	18,69±0,19	18,82±0,20
PA-68	10,59±0,06	5,23±0,01	7,44±0,02	7,91±0,03
PA-69	113,0±2,5	214,4±1,4	155,6±1,8	163,7±1,4
PA-70	3,40±0,21	4,47±0,84	3,90±0,39	3,94±0,43

Nota:

ND - Concentração não determinada.

Tabela 6.2 Valor da concentração de atividade de urânio das águas do lençol semi-confinado da região urano-fosfática do Nordeste do Brasil.

CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO (mBq/L)				
LOCAL	período	período	média	média
	de seca	de chuva	geométrica	aritmética
PT-01	34,43±0,75	21,71±0,48	27,34±0,42	28,07±0,45
PT-02	17,60±0,38	ND	17,60±0,38	17,60±0,38
PT-03	176,2±4,5	184,8±2,2	180,4±2,5	180,5±2,5
PT-04	26,16±0,87	56,9±1,2	38,59±0,76	41,55±0,74
PT-05	11,54±0,82	10,80±0,89	11,16±0,61	11,17±0,61
PT-06	148,2±2,8	187,5±3,4	166,7±2,2	167,8±2,2
PT-07	45,27±0,47	46,6±1,9	45,93±0,95	45,93±0,96
PT-08	12,11±0,18	18,8±1,8	15,1±0,73	15,47±0,90
PT-09	25,9±1,7	18,45±0,39	21,86±0,75	22,18±0,87
PT-10	32,39±0,89	26,04±0,70	29,04±0,56	29,22±0,57
PT-11	18,6±1,0	19,92±0,06	19,25±0,54	19,26±0,52
PT-12	58,7±4,5	71,9±2,3	65,0±2,7	65,3±2,5
PT-13	17,27±0,22	3,38±0,20	7,62±0,23	10,32±0,15
PT-14	21,58±0,30	15,5±1,2	18,29±0,73	18,54±0,63
PT-15	1,56±0,25	9,30±0,17	3,81±0,31	5,43±0,15
PT-16	36,6±1,4	12,60±0,66	21,47±0,69	24,60±0,77
PT-17	10,80±0,16	11,57±0,48	11,18±0,25	11,19±0,25
PT-18	14,78±0,49	14,9±1,2	14,84±0,65	14,84±0,65

Nota:

ND - Concentração não determinada.

Tabela 6.3 Valor da concentração de atividade de urânio das águas superficiais da região urano-fosfática do Nordeste do Brasil.

CONCENTRAÇÃO DE URÂNIO (mBq/L)				
LOCAL	período	período	média	média
	de seca	de chuva	geométrica	aritmética
Rios ou Riachos				
RS-01	9,14±0,44	12,03±0,10	10,49±0,26	10,59±0,23
RS-02	4,62±0,33	7,84±0,50	6,02±0,29	6,23±0,30
RS-04	2,37±0,22	4,86±0,10	3,39±0,16	3,61±0,12
RS-05	4,23±0,54	5,01±0,10	4,60±0,30	4,62±0,27
RS-08	21,92±0,50	17,35±0,67	19,50±0,44	19,69±0,42
RS-11	22,4±1,2	2,20±0,36	7,02±±0,60	12,30±0,62
RS-12	3,73±0,52	3,62±0,12	3,67±0,26	3,68±0,27
Fontes				
RS-03	40,3±1,4	50,9±2,0	45,3±1,2	45,6±1,2
RS-06	1,04±0,09	2,6±0,07	1,64±0,07	1,82±0,06
RS-07	20,80±0,12	20,13±0,50	20,46±0,26	20,47±0,26
RS-09	9,61±0,38	8,10±0,37	8,82±0,27	8,86±0,27
RS-10	1,23±0,53	1,20±0,10	1,21±0,27	1,22±0,27
RS-13	11,00±0,17	11,21±0,44	11,10±0,23	11,11±0,24

Na aplicação do teste de Student⁹⁷ aos conjuntos de dados referentes aos dois períodos de coleta, foram encontradas probabilidades na faixa de 10 a 90%, comprovando que as duas séries de observações provêm de uma mesma população de dados de uma distribuição. Portanto pode-se afirmar que a sazonalidade não é um fator determinante no comportamento das concentrações.

Os desvios relativos ao valor médio das concentrações dos dois períodos de cada ponto de coleta são mostrados na figura 6.7. Verifica-se que em cerca de 50% dos dados o desvio é inferior a 11%. Na análise comparativa dos valores médios das concentrações entre os três aquíferos, observou-se que o valor médio do aquífero semi-confinado (41,8 mBq/L), que se encontra mais próximo do embasamento cristalino, é aproximadamente duas vezes superior ao aquífero do lençol freático (23,4 mB/L) e cerca de quatro vezes superior à concentração média de urânio encontrada nos recursos hídricos superficiais (11,5mBq/L).

Na prova de aderência de Kolmogorov-Smirnov⁹⁸ foram encontrados coeficientes (p) não significativos para os três tipos de recursos hídricos. Portanto, pode-se afirmar que os dados seguem uma distribuição lognormal. A figura 6.8 mostra a boa concordância dos dados com esta distribuição.

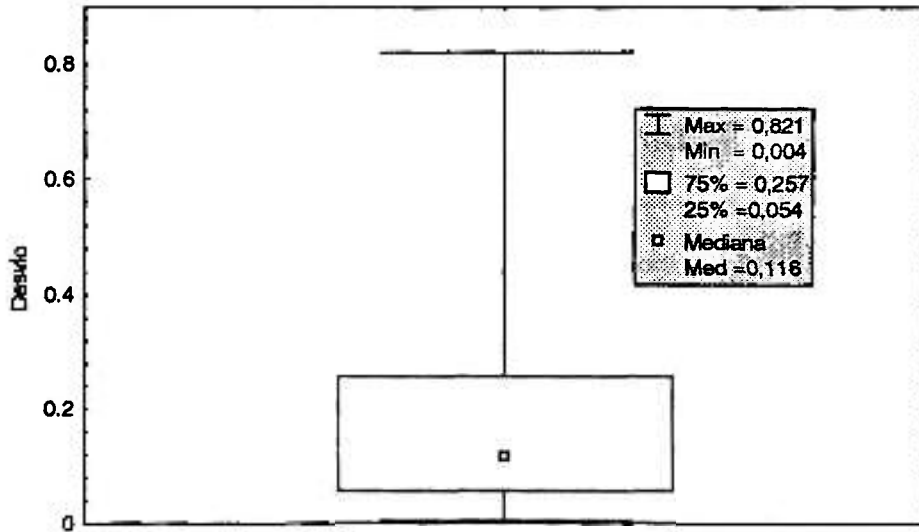


Figura 6.7 Desvio das concentrações de urânio em relação ao valor médio

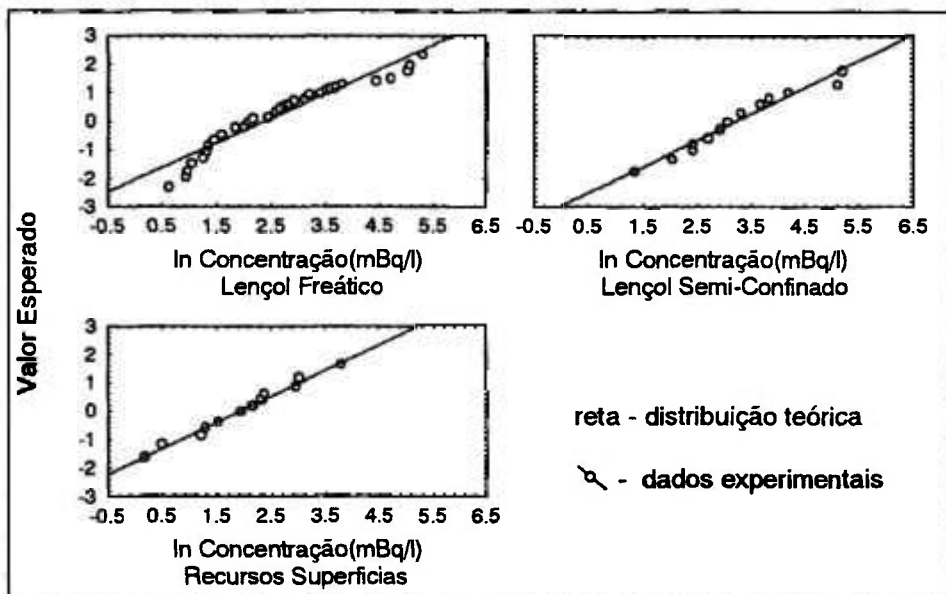


Figura 6.8 Desvios da distribuição normal teórica e experimental do logaritmo das concentrações de urânio

Na distribuição de frequência das concentrações mostradas na figura 6.9, os resultados indicam que cerca de 88% dos pontos estão acima do nível mínimo de registro (NMR = 3,7 mBq/L). Este valor é definido no trabalho de Longtin⁵⁰, no qual foi realizado uma ampla análise dos valores dos radionuclídeos em sistemas de abastecimento de águas públicas dos Estados Unidos. Comparando as concentrações de urânio encontradas, verifica-se que somente 3% dos poços ultrapassam o nível de referência de 0,1 Bq/L adotado pela norma brasileira de potabilidade referente à radioatividade⁹⁹.

Dados sobre concentração de urânio na água são relativamente escassos, sendo as determinações geralmente realizadas quando existe a possibilidade de contaminação devido à mineração de urânio ou utilização de fertilizantes fosfatados. A única exceção ocorre nos Estados Unidos, que realizaram uma ampla avaliação das concentrações no programa "Levantamento Nacional de Fontes de Urânio" (NURE)². Os valores médios das concentrações encontradas foram de 40 mBq/L e 118,4 mBq/L para águas superficiais e subterrâneas respectivamente. Fisene et al.¹⁰⁰ encontraram uma concentração média de aproximadamente 1,9 mBq/L nas águas do sistema de abastecimento da cidade de Nova York. Em Helsinque, na Finlândia¹⁰¹, a média das concentrações das águas subterrâneas que abastecem a cidade é de 455 mBq/L.

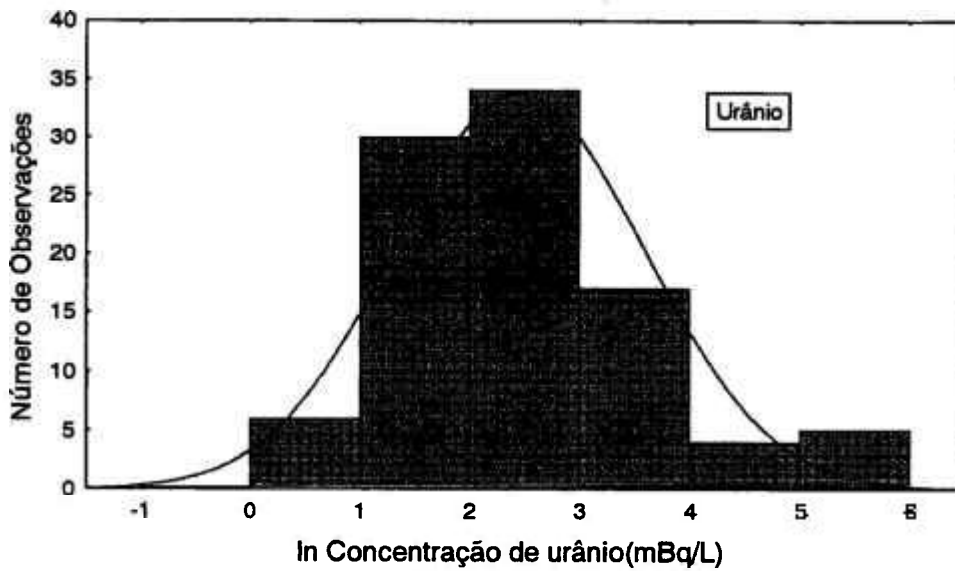


Figura 6.9 Curva de distribuição das concentrações de urânio dos recursos hídricos da região urano-fosfática do nordeste

Nos levantamentos realizados nas fontes de Poços de Caldas²⁴ foram encontradas concentrações na faixa de 3 a 83,6 mBq/L. Portanto, as concentrações encontradas na região urano-fosfática de Pernambuco, com média aritmética (referente a todos os recursos hídricos) de 25 mBq/L e valor máximo de 204 mBq/L, são relativamente baixas se comparadas aos níveis encontrados nos Estados Unidos e Finlândia.

Na tabela 6.4 são apresentados os coeficientes de correlação (r) e a probabilidade (p) entre os valores das concentrações de urânio e os parâmetros físico-químico das águas. Foi utilizado na determinação das correlações o método de Pearson⁹⁷. Verifica-se que as concentrações de urânio foram positivamente correlacionadas com as concentrações de Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻ e com a dureza e negativamente correlacionadas com a resistividade, não existindo nenhuma correlação com os valores de pH e as concentrações de sulfatos. Este fato mostra o aumento da solubilidade do urânio na presença dos íons na água. No caso de carbonatos, o urânio forma complexos solúveis bastante estáveis com valores de pH da água entre 7 e 9¹⁰². Para comprovar este comportamento foi feita a análise de correlação de urânio com carbonatos nesta faixa, verificando-se um aumento significativo do coeficiente de correlação. Nas figuras 6.10 e 6.11 são mostradas as correlações de urânio com carbonatos para águas com valores de pH entre 7 e 9 e valores fora deste intervalo.

Tabela 6.4 Correlações entre as concentrações de urânio e os parâmetros físico-químicos das águas da região urano-fosfática de Pernambuco

Parâmetro	Geral		Lençol Freático	
	r	p	r	p
Dureza	0,48	0,000	0,58	0,000
pH	-0,15	0,239	-0,14	0,345
Resistividade	-0,29	0,026	-0,31	0,040
Resíduo Seco	0,51	0,000	0,59	0,000
Ca ²⁺	0,42	0,001	0,46	0,002
Mg ²⁺	0,47	0,000	0,60	0,000
Na ⁺	0,35	0,007	0,35	0,021
K ⁺	0,35	0,006	0,42	0,005
Cl ⁻	0,60	0,000	0,58	0,000
SO ₄	0,13	0,339	0,27	0,073
HCO ₃	0,33	0,009	0,51	0,000

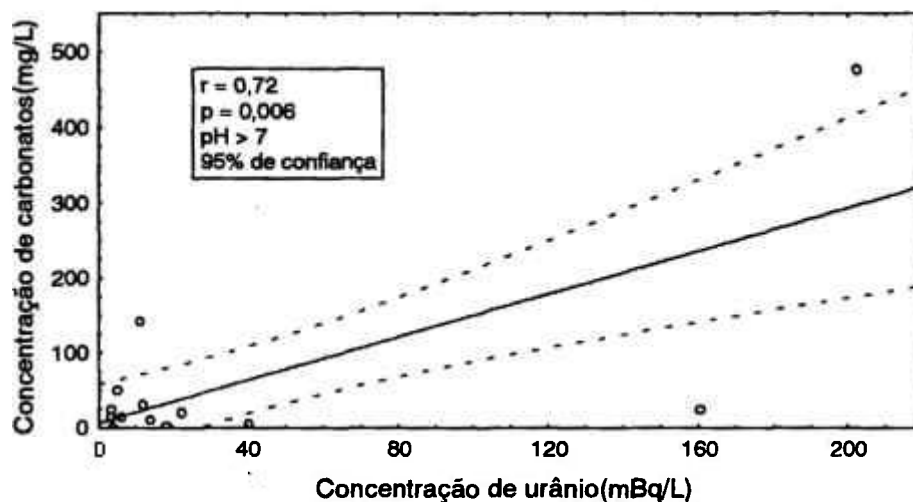


Figura 6.10 Correlação entre as concentrações de urânio e de carbonatos nas águas da região urano-fosfática de Pernambuco para $\text{pH} > 7$

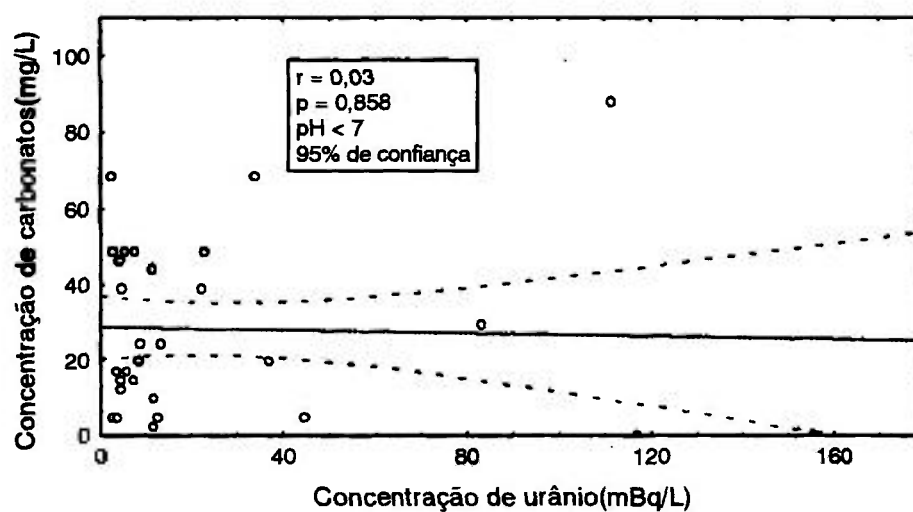


figura 6.11 Correlação entre as concentrações de urânio e de carbonatos nas águas da região urano-fosfática de Pernambuco para $\text{pH} < 7$

6.3 Concentração de ^{226}Ra

Os dados das concentrações de rádio correspondentes aos períodos de seca e de chuva e suas respectivas médias geométricas e aritméticas estão apresentados nas tabelas 6.5, 6.6 e 6.7. Na análise dos dados verifica-se para o lençol freático as concentrações médias de 358 e 291,4 mBq/L nos períodos seco e de chuva com valores máximos respectivamente de 4680 e 5446 mBq/L. No lençol semi-confinado os valores médios foram de 225,4 e 243,4 mBq/L e os valores máximos de 855 e 1268 mBq/L para os períodos de seca e de chuva respectivamente. Os recursos hídricos superficiais apresentaram valores de 86,6 e 64,3 mBq/L para as concentrações médias e os valores máximos respectivos foram de 375,6 e 299,5 mBq/L.

Testes estatísticos aplicados aos conjuntos de dados do período seco e de chuva mostraram que não existe diferença significativa entre os dois períodos sazonais de coleta. Na figura 6.12 são mostrados os desvios em relação à média das concentrações dos dois períodos para cada ponto de coleta. Observa-se que 50% dos dados têm um desvio inferior a 17%.

Tabela 6.5 Valor da concentração de atividade de ^{226}Ra das águas do lençol freático da região urano-fosfática do nordeste do Brasil

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (mBq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-01	16,5±3,0	19,9±2,6	18,1±2,0	18,2±2,0
PA-02	66,2±4,2	43,6±3,4	53,7±2,7	54,9±2,7
PA-03	8,0±2,0	ND	8,0±2,0	8,0±2,0
PA-04	21,7±2,6	25,0±2,4	23,3±1,8	23,3±1,8
PA-05	2,3±2,3	4,9±2,5	3,4±1,9	3,6±1,7
PA-06	3,4±2,3	6,2±1,5	4,6±1,6	4,8±1,4
PA-07	18,1±2,7	16,9±1,8	17,5±1,6	17,5±1,6
PA-08	6,4±2,7	12,6±1,8	9,0±2,0	9,5±1,6
PA-09	909±12	662±11	775,7±8,2	785,5±8,1
PA-10	228,1±8,0	249,2±6,8	238,4±5,3	238,6±5,2
PA-11	146,9±6,4	199,8±5,8	171,3±4,5	173,3±4,3
PA-12	195,8±6,0	554±12	329,3±6,2	374,9±6,7
PA-13	396,9±9,7	384,8±5,8	384,9±5,9	385,0±5,9
PA-14	22,6±3,1	9,8±2,3	14,8±2,0	16,2±1,9
PA-15	16,6±2,1	8,3±3,0	11,7±2,2	12,5±1,8
PA-16	ND	8,2±2,4	8,2±2,4	8,2±2,4
PA-17	ND	12,9±2,8	12,9±2,8	12,9±2,8
PA-18	133,1±5,0	67,0±4,2	94,4±3,4	100,0±3,3
PA-19	44,3±3,2	23,9±3,3	32,5±2,5	34,1±2,3
PA-20	83,1±4,0	105,9±4,0	93,8±2,8	94,5±2,8
PA-21	506,0±9,7	320,0±7,7	402,4±6,2	413,0±6,2
PA-22	31,0±3,0	80,0±4,0	49,8±2,7	55,5±2,5
PA-23	165,0±5,8	182,8±6,0	173,7±4,2	173,9±4,2
PA-24	66,8±3,7	71,3±3,8	69,0±2,6	69,0±2,6
PA-25	718±11	311,1±7,6	472,6±6,8	514,5±6,7

Tabela 6.5 (Continuação)

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (mBq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-26	33,4±2,8	20,2±3,4	26,0±2,4	26,8±2,2
PA-27	280,0±8,0	65,9±4,5	135,8±5,0	172,9±4,6
PA-28	1713±17	1238±14	1456±11	1475±11
PA-29	4680±28	5446±21	5048±21	5063±21
PA-30	7,2±3,0	8,2±1,8	7,7±1,8	7,7±1,7
PA-31	40,7±3,8	40,1±2,9	40,4±2,4	40,4±2,4
PA-32	27,0±3,1	44,0±3,2	34,5±2,3	35,5±2,2
PA-33	64,6±3,8	86,8±4,6	74,8±3,0	75,7±3,0
PA-34	227,6±6,4	212,0±7,0	219,8±4,8	219,9±4,7
PA-35	29,2±3,4	50,7±3,5	38,5±2,6	40,0±2,4
PA-36	121,1±4,9	151,1±6,2	135,3±3,9	136,1±3,9
PA-37	103,1±4,9	54,0±3,4	74,6±2,9	78,5±3,0
PA-38	25,1±3,1	6,4±2,6	12,7±2,7	15,7±2,0
PA-39	12,5±2,2	8,0±2,0	10,0±1,5	10,2±6,5
PA-40	144,9±6,0	182,7±5,9	162,7±4,3	163,8±4,2
PA-41	254,6±7,0	156,6±5,4	199,7±1,4	205,6±4,4
PA-42	160,6±5,9	132,2±5,4	145,7±4,0	146,4±4,0
PA-43	529±10	343,7±8,2	426,4±6,5	436,4±6,5
PA-44	68,5±3,8	44,6±3,8	55,3±2,8	56,5±2,7
PA-45	246,3±6,6	556±10	370,0±5,0	401,1±6,0
PA-46	59,2±4,6	86,7±4,6	71,6±3,4	72,9±3,2
PA-47	113,5±5,3	44,3±3,7	70,9±3,4	79,0±3,2
PA-48	58,3±4,5	80,9±4,3	68,7±3,2	69,6±3,1
PA-49	32,3±3,3	19,7±2,7	25,2±2,2	26,0±2,1
PA-50	16,2±2,3	9,0±2,7	12,1±2,0	12,6±1,8
PA-51	92,7±4,4	35,6±2,8	57,4±2,6	64,1±2,6

Tabela 6.5 (Continuação)

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (mBq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-52	48,8±3,1	28,1±3,0	37,0±2,3	38,4±2,2
PA-53	13,4±2,4	16,0±2,4	14,6±1,7	14,7±1,7
PA-54	38,1±2,8	ND	38,6±2,8	38,6±2,8
PA-55	85,1±4,9	78,1±4,2	81,5±3,2	81,6±3,2
PA-56	142,3±5,2	129,4±5,2	135,7±3,7	135,8±3,7
PA-57	398,2±8,8	219,5±6,4	295,6±5,4	308,8±5,4
PA-58	555±10	591,5±9,8	573,0±7,0	573,2±7,0
PA-59	3371±26	1603±16	2324±14	2487±15
PA-60	545±11	381,3±8,3	455,9±6,8	463,1±6,9
PA-61	921±13	816±12	866,9±8,8	868,5±8,8
PA-62	95,5±5,2	78,8±5,1	86,7±3,7	87,1±3,6
PA-63	18,9±2,3	21,7±2,8	20,2±1,8	20,3±1,8
PA-64	13,9±2,3	17,7±2,4	15,7±1,7	15,8±1,7
PA-65	1297±15	570±11	859,8±9,7	933,5±9,3
PA-66	158,0±6,0	220,0±7,0	186,4±4,6	189,0±4,6
PA-67	316,3±7,7	158,0±6,0	223,5±5,0	237,1±5,0
PA-68	76,8±4,0	77,7±4,0	77,2±2,8	77,2±2,8
PA-69	3151±23	2160±20	2608±15	2655±15
PA-70	145,8±5,3	158,3±5,5	151,9±3,8±	152±3,8

Nota:

ND - Concentração não determinada.

Tabela 6.6 Valor da concentração de atividade de ^{226}Ra das águas do lençol semi-confinado da região urano-fosfática do nordeste do Brasil

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (mBq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PT-01	20,6±3,0	23,2±2,5	21,9±2,0	21,9±1,9
PT-02	14,8±2,2	ND	14,8±2,2	14,8±2,2
PT-03	607±14	561±11	583,5±8,8	584±8,9
PT-04	84,9±4,9	80,4±4,2	82,6±3,2	82,6±3,2
PT-05	193,3±6,2	120,4±4,8	152,6±3,9	156,8±3,9
PT-06	855±13	1268±17	1041±10	1061±11
PT-07	522±11	585±10	552,7±7,5	552,6±7,5
PT-08	46,3±3,4	56,9±3,4	51,3±2,4	51,6±2,4
PT-09	45,0±4,8	40,0±3,0	42,4±2,8	42,5±2,8
PT-10	450,6±8,8	431,9±8,6	441,1±6,1	441,2±6,1
PT-11	10,8±3,5	14,5±2,2	12,5±2,2	12,6±2,1
PT-12	485±12	581±10	530,8±8,0	533,0±7,8
PT-13	493,0±10	149,0±5,2	271,0±5,5	321,0±5,6
PT-14	84,3±5,3	98,2±4,5	91,0±3,5	91,2±3,5
PT-15	21,1±4,9	8,1±2,0	13,1±2,2	14,6±2,6
PT-16	85,8±4,1	64,7±5,0	74,5±3,4	75,2±3,2
PT-17	14,1±2,8	29,9±3,4	20,5±2,3	22,0±2,2
PT-18	23,9±2,3	26,3±2,5	25,1±1,7	25,1±1,7

Nota:

ND - Concentração não determinada.

Tabela 6.7 Valor da concentração de atividade de ^{226}Ra das águas superficiais da região urano-fosfática do nordeste do Brasil

CONCENTRAÇÃO DE ^{226}Ra (mBq/L)				
LOCAL	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
Rios ou Riachos				
RS-01	10±2,7	3,5±2,1	5,9±1,9	6,7±1,7
RS-02	76,4±4,6	132,4±5,7	100,6±3,7	104,4±3,7
RS-04	3,5±2,2	5,1±2,3	4,2±1,6	4,3±1,6
RS-05	66,3±3,6	8,5±2,6	23,7±3,7	37,4±2,2
RS-08	77,0±4,8	36,6±3,4	53,1±3,0	56,8±2,9
RS-11	375,6±8,0	299,6±7,5	335,0±5,5	337,6±5,5
RS-12	18,3±2,5	9,3±1,9	13,0±1,6	13,8±1,6
Fontes				
RS-03	114,6±5,6	117,3±4,8	115,9±3,7	115,9±3,7
RS-06	5,9±1,9	7,4±2,6	6,6±1,6	6,6±1,6
RS-07	148,8±5,8	76,2±8,8	106,5±3,4	112,5±3,5
RS-09	83,4±4,6	46,3±3,5	62,1±2,9	64,8±3,0
RS-10	8,9±3,0	8,8±2,6	8,8±2,0	8,8±2,0
RS-13	97,3±4,5	85,2±4,3	91,0±3,1	91,2±3,1

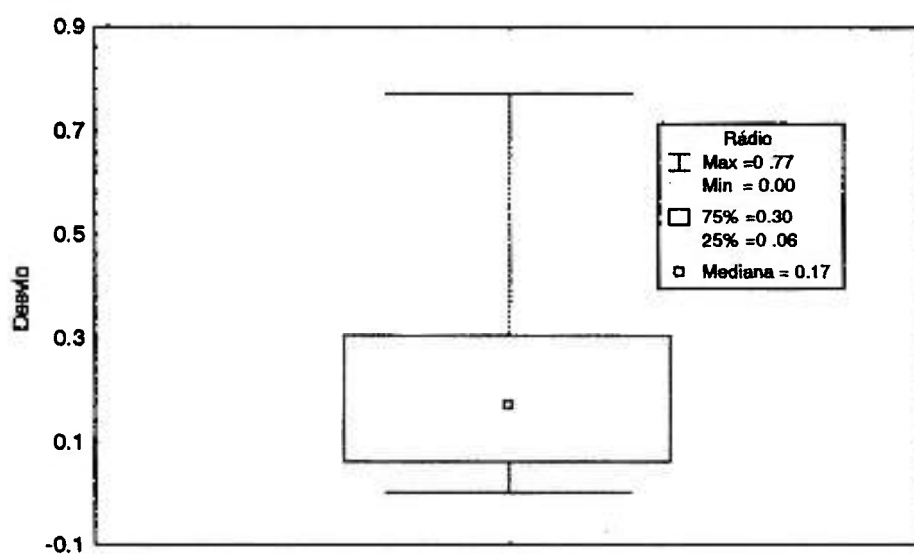


Figura 6.12 Desvio das concentrações de ^{226}Ra em relação ao valor médio

Comparando os valores das concentrações médias gerais de ^{226}Ra dos recursos hídricos subterrâneos (lençol freático 334 mBq/L e semi-confinado 240,6 mBq/L) com os recursos superficiais (73,9 mBq/L), nota-se que os valores encontrados nos primeiros são bem superiores. Esse comportamento foi observado em alguns trabalhos, inclusive no levantamento das concentrações de rádio nos sistemas de abastecimento de água nos Estados Unidos ⁸.

Na figura 6.13 é mostrada a curva de distribuição das concentrações de rádio. Os valores encontrados são sempre superiores aos valores das concentrações de urânio do mesmo ponto. A relação média observada entre o ^{226}Ra e o urânio é de 18 e a maior relação encontrada de 296. Esse comportamento também foi encontrado em outros sistemas hídricos⁸. A ocorrência de rádio em níveis mais altos acontece devido às diferenças das propriedades químicas dos dois radionuclídeos e ao deslocamento dos núcleos de ^{226}Ra pelo recuo alfa dos decaimentos de seus antecessores, favorecendo o lixiviamento do elemento da matriz sólida do aquífero para a água.

Provas de aderência comprovam uma boa concordância dos dados com a distribuição lognormal referente aos três recursos hídricos.(figura 6.14)

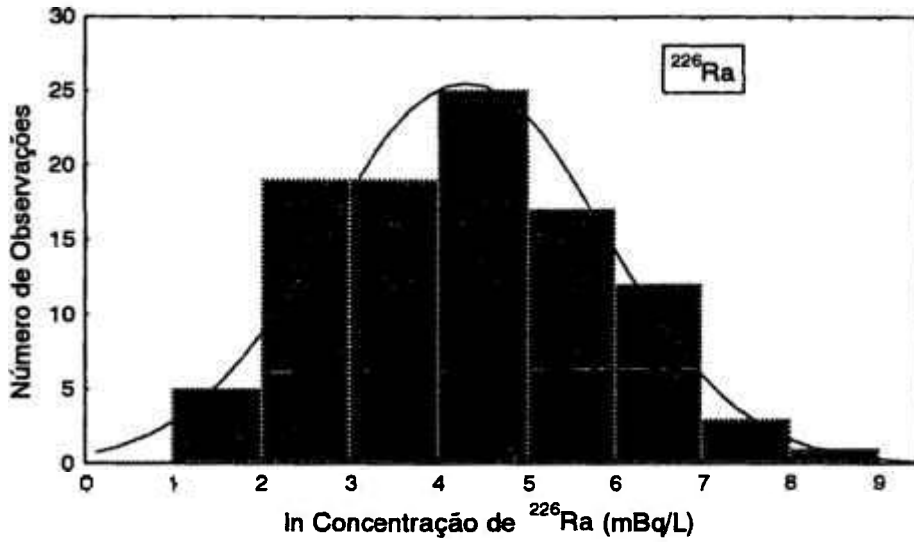


Figura 6.13 Curva de distribuição das concentrações de ^{226}Ra dos recursos hídricos da região urano-fosfática do nordeste

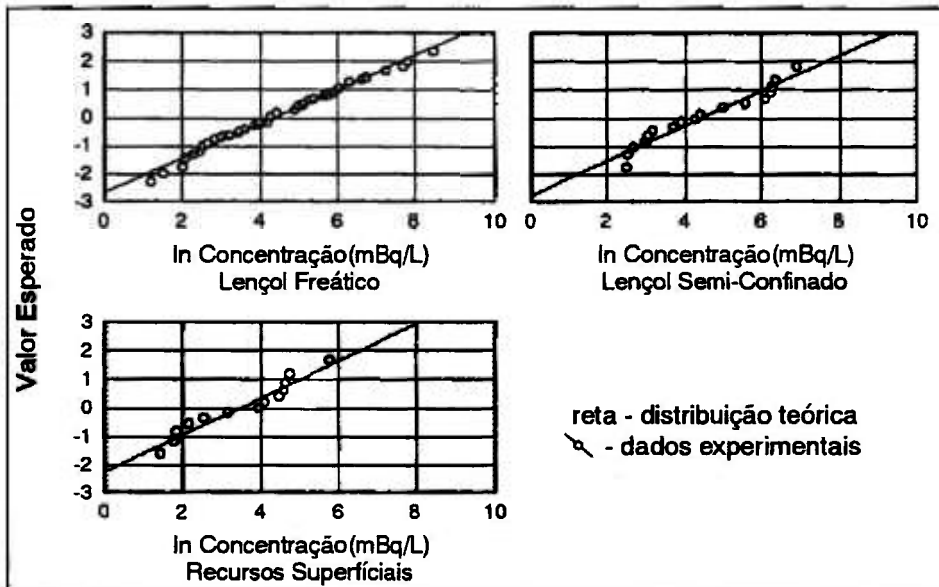


Figura 6.14 Desvios da distribuição normal teórica e experimental do logaritmo das concentrações de ^{226}Ra

Analisando os dados sob o ponto de vista de potabilidade em relação às concentrações de rádio, verifica-se que 98% dos valores encontrados ultrapassam o nível de registro (6,6 mBq/L), 25% ultrapassam o nível MCL adotado pela USEPA (185 mBq/L) e 39% ultrapassam o nível de referência de 0,1 Bq/L da norma brasileira⁹⁹.

Na tabela 6.8 são apresentados os coeficientes de correlação (r) e a probabilidade (p) entre os valores das concentrações de ^{226}Ra e os parâmetros físico-químicos das águas. Foi utilizado na determinação das correlações o método de Pearson⁹⁷. Verifica-se que as concentrações de ^{226}Ra foram positivamente correlacionadas com as concentrações de Na^+ , K^+ , Cl^- e valores de pH e negativamente correlacionadas com a resistividade, não existindo nenhuma correlação com Ca^{2+} , Mg^{2+} , SO_4 , HCO_3 , dureza e resíduo seco. Estas observações comprovam a afirmação de Tanner³⁵ de que, nas águas com baixa resistividade, os íons positivos presentes competem com íons de rádio no processo de absorção; assim a presença desses íons favorece a permanência do rádio na solução. Também Gascoyne¹⁰² em trabalho realizado no Canadá, numa região com altos níveis de urânio e rádio observou que o rádio é rapidamente removido da solução na presença de argila e coprecipitado com sulfatos com valores de pH bastante altos ou bastante baixos e se estabiliza em soluções com altas concentrações de Ca, Mg e Cl.

Tabela 6.8 Correlações entre as concentrações de ^{226}Ra e os parâmetros físico-químicos das águas da região urano-fosfática de Pernambuco

Parâmetro	Lençol Freático		Geral	
	r	p	r	p
Dureza	0,10	0,485	0,05	0,698
pH	-0,32	0,037	-0,29	0,026
Resistividade	-0,33	0,028	-0,27	0,036
Resíduo Seco	0,27	0,066	0,21	0,105
Ca ²⁺	0,20	0,176	0,17	0,188
Mg ²⁺	0,05	0,706	0,00	0,988
Na ⁺	0,42	0,004	0,42	0,001
K ⁺	0,63	0,000	0,54	0,000
Cl ⁻	0,37	0,013	0,39	0,002
SO ₄	0,05	0,709	0,07	0,560
HCO ₃	0,05	0,738	0,03	0,794

Nas figuras 6.15 e 6.16 observa-se uma correlação significativa entre as concentrações de urânio e as de ^{226}Ra para os lençóis freáticos e semi-confinados. Por termos somente um pequeno número de pontos de coleta para um específico recurso hídrico superficial, rio, lagoa ou fontes surgentes, não foi realizada nenhuma análise de correlação para estes recursos.

Em trabalho realizado na região fosfática da Carolina do Norte¹⁰³ foram encontradas concentrações de ^{226}Ra na faixa de 4,4 a 110 mBq/L com valor médio de 16 mBq/L. Já na antiga Checoslováquia¹⁰⁴, na região da Boêmia, numa área de mineração de urânio, foram encontradas, num local mais próximo da mineração, concentrações de ^{226}Ra em águas superficiais da ordem de 333 mBq/L, e, numa zona mais afastada, valores de aproximadamente 77,1 mBq/L.

O levantamento de concentrações de rádio em 19 fontes de águas minerais no planalto de Poços de Caldas²⁴ indicou que 13 destas apresentaram concentrações abaixo do limite de detecção (17 mBq/L), 5 fontes variaram entre 17 e 340 mBq/L e a concentração máxima obtida foi de 2358 mBq/L.

As concentrações de ^{226}Ra encontradas para a região fosfática de Pernambuco apresentam valores relativamente mais

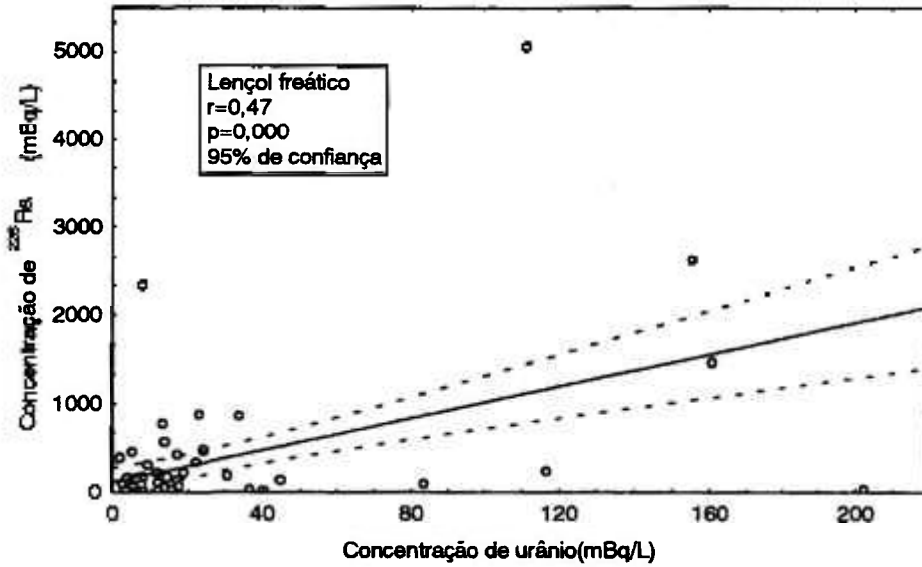


Figura 6.15 Correlação entre as concentrações de urânio e ^{226}Ra

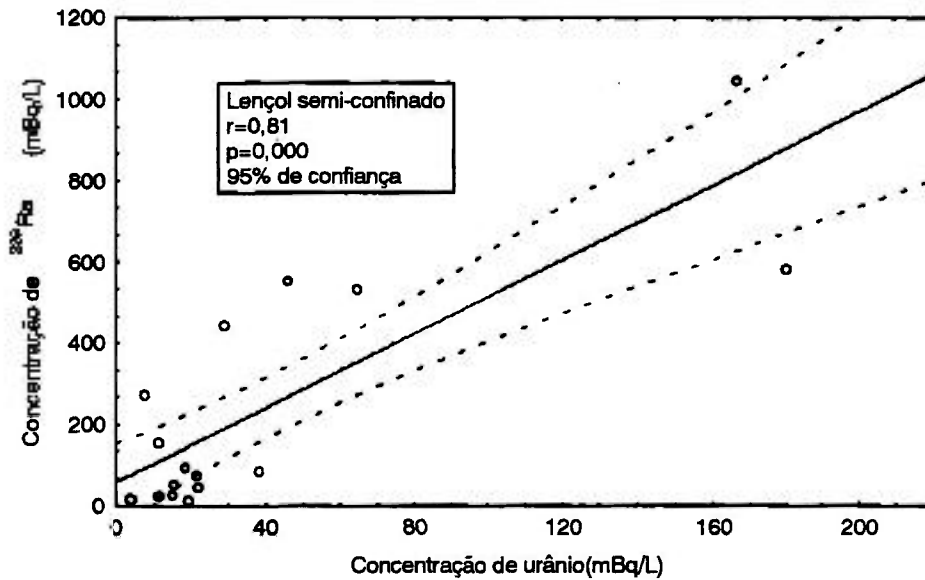


Figura 6.16 Correlação entre as concentrações de urânio e ^{226}Ra

elevados. O valor médio geral de 228,8 mBq/L supera todos os índices internacionais que balizam o nível de máxima concentração. O valor máximo encontrado de 5063 mBq/L não é comumente referenciado na literatura, o que justifica plenamente o presente estudo.

6.4 Concentração de ^{222}Rn

O número de pontos analisados para ^{222}Rn foi inferior aos do urânio e do ^{226}Ra , em decorrência do fato de que em alguns poços o bombeamento da água era realizado com a injeção de ar comprimido. Esse procedimento descaracterizava as concentrações de radônio e por isso foram descartadas. As concentrações de ^{222}Rn para os períodos de seca e chuva e suas respectivas médias geométricas e aritméticas são apresentadas na Tabela 6.9, 6.10 e 6.11.

Pelas tabelas 6.9, 6.10 e 6.11 verifica-se que no lençol freático as médias das concentrações de ^{222}Rn foram de 130 e 118 Bq/L e os valores máximos 1491 e 1019 Bq/L para as épocas de seca e de chuva respectivamente. No lençol semi-confinado, os valores das concentrações de ^{222}Rn , na época de seca, foram de 51 e 207 Bq/L para os valores médios e máximos. Na época de chuva, foram respectivamente 38 e 149 Bq/L; já para os recursos superficiais foram encontrados valores médios e máximos de 78,2 e 315,2 Bq/L para o período seco e 70 e 304 Bq/L para o período de chuva.

Tabela 6.9 Valor da concentração de atividade de ^{222}Rn das águas do lençol freático da região urano-fosfática do nordeste do Brasil

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{222}Rn (Bq/L)			
	período	período	média	média
	de seca	de chuva	geométrica	aritmética
PA-01	26,41±0,39	22,2±1,4	24,22±0,76	24,31±0,20
PA-02	113,2±1,5	42,8±2,1	69,6±1,7	78,04±0,76
PA-04	1237,1±1,0	802,3±4,7	996,2±2,9	1019,7±1,0
PA-05	3,71±0,92	18,13±0,55	8,2±1,0	10,92±0,46
PA-07	19,6±1,9	12,58±0,33	15,69±0,78	16,07±0,94
PA-08	10,15±0,41	8,2±1,0	9,11±0,60	9,16±0,20
PA-09	462±21	414,0±6,2	437±10	438±10
PA-10	144,8±2,0	148,6±1,7	146,7±1,3	146,7±1,0
PA-11	46,27±0,55	91,7±1,0	65,14±0,54	68,99±0,28
PA-12	66,56±0,59	26,7±1,9	42,1±1,5	46,62±0,30
PA-13	67,8±2,1	154,7±2,7	102,4±1,8	111,2±1,0
PA-14	16,34±0,12	22,90±0,37	19,34±0,17	19,62±0,06
PA-15	7,88±0,41	11,76±0,09	9,62±0,25	9,82±0,08,
PA-18	23,05±0,16	36,11±0,92	28,85±0,38	29,58±0,08
PA-20	77,77±0,41	56,65±0,67	66,37±0,43	67,21±0,30
PA-21	52,9±1,4	35,96±0,53	43,62±0,68	44,44±0,72
PA-22	41,2±1,1	144,4±4,8	77,1±1,6	92,81±0,56
PA-23	31,67±0,81	31,4±2,2	31,5±1,2	31,54±0,41
PA-24	34,15±0,31	25,9±1,7	29,77±0,98	30,05±0,16
PA-25	61,32±0,36	80,9±3,9	70,4±1,7	71,10±0,18
PA-26	33,2±2,1	31,86±0,44	32,5±1,0	32,5±1,0
PA-27	238,9±3,7	120,1±3,4	169,3±2,7	179,5±1,8
PA-28	34,67±0,09	121,42±0,03	64,88±0,09	78,04±0,05
PA-29	95,7±2,2	78,8±8,7	86,9±1,1	87,3±1,1
PA-30	34,41±0,07	19,64±0,05	26,00±0,04	27,02±0,04

Tabela 6.9 (Continuação)

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{222}Rn (Bq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-31	35,89±0,74	45,1±4,1	40,2±1,8	40,47±0,37
PA-32	86,2±2,4	70,78±0,74	78,1±1,1	78,5±1,2
PA-33	1491±39	1019±18	1233±19	1255±19
PA-34	241,0±3,2	674,1±1,3	403,0±2,7	457,5±1,6
PA-35	55,2±1,1	25,2±1,6	37,3±1,3	40,22±0,57
PA-36	51,7±2,7	58,4±1,0	54,9±1,5	55,0±1,4
PA-37	52,03±0,23	40,15±1,1	45,70±0,66	46,08±0,12
PA-38	374,5±7,5	449,4±6,4	410,3±5,0	412,0±3,7
PA-39	12,54±0,37	40,5±3,5	22,5±1,0	26,55±0,9
PA-40	50,2±2,2	33,80±0,05	41,2±0,92	42,0±1,1
PA-41	138,4±4,8	117,5±1,5	127,5±2,4	127,9±2,4
PA-42	95,5±2,8	90,9±3,1	93,1±2,1	96,2±1,4
PA-43	26,1±1,0	20,94±0,48	23,38±0,54	23,53±0,52
PA-44	195,3±1,7	ND	195,3±1,7	195,3±1,7
PA-45	24,53±0,37	51,38±0,89	35,50±0,41	37,95±0,19
PA-46	131,3±3,6	77,05±0,22	100,6±1,4	104,2±1,8
PA-47	70,1±2,1	42,2±2,1	54,4±1,6	56,2±1,1
PA-48	82,62±0,85	50,0±1,6	64,2±1,1	66,28±0,43
PA-49	14,15±0,59	14,67±0,78	14,41±0,48	14,41±0,29
PA-50	40,2±1,7	32,5±1,4	36,1±1,1	36,33±0,83
PA-51	38,7±2,1	18,7±3,5	26,9±2,6	28,7±1,0
PA-52	29,7±1,5	19,68±0,63	24,20±0,73	24,72±0,76
PA-53	28,19±0,17	22,57±0,55	25,22±0,32	25,38±0,08
PA-54	28,56±0,70	81,62±0,10	48,28±0,59	55,09±0,35
PA-55	85,50±0,12	100,82±0,03	92,85±0,07	93,17±0,06
PA-56	90,3±1,9	69,4±1,2	79,2±1,1	79,86±0,94

Tabela 6.9 (Continuação)

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{222}Rn (Bq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PA-57	57,83±0,89	33,2±2,8	43,8±1,9	45,51±0,44
PA-58	ND	124,5±2,2	124,5±2,2	124,5±2,2
PA-59	144,9±4,1	102,01±0,75	121,6±1,8	123,5±2,1
PA-60	26,75±0,87	28,27±0,56	27,5±0,52	27,51±0,44
PA-61	79,8±2,2	101,93±0,03	90,2±1,3	90,8±1,1
PA-62	742,9±7,2	700,1±6,1	721,2±4,7	721,5±3,6
PA-63	70,85±0,44	62,05±40	66,39±0,30	66,45±0,22
PA-64	17,6±1,5	15,5±1,3	16,5±1,0	16,52±0,76
PA-65	134,0±1,7	98,0±1,1	114,5±1,0	115,97±0,87
PA-66	39,11±0,66	40,4±1,7	39,76±0,94	39,76±0,33
PA-67	230,2±3,5	163,3±7,9	193,9±4,9	196,8±1,7
PA-68	49,82±0,70	50,10±0,63	49,96±0,47	49,96±0,35
PA-69	176,70±0,44	170,2±4,6	173,4±2,3	173,45±0,22
PA-70	24,67±0,17	26,08±0,99	25,37±0,49	25,38±0,09

Nota:

ND - Concentração não determinada.

Tabela 6.10 Valor da concentração de atividade de ^{222}Rn das águas do lençol semi-confinado da região urano-fosfática do nordeste do Brasil

LOCAL	CONCENTRAÇÃO DE ^{222}Rn (Bq/L)			
	período de seca	período de chuva	média geométrica	média aritmética
PT-01	46,68±0,17	41,4±1,4	43,96±0,73	44,04±0,92
PT-03	13,30±0,92	9,64±0,44	11,32±0,47	11,47±0,46
PT-04	28,7±2,7	11,5±2,6	18,2±2,2	20,1±1,3
PT-05	9,02±0,09	7,44±0,85	8,19±0,47	8,23±0,05
PT-06	21,26±0,09	26,20±0,95	23,60±0,43	23,73±0,05
PT-07	188,7±1,5	148,7±1,2	167,52±0,96	168,72±0,76
PT-08	6,57±0,08	2,40±0,01	3,97±0,09	4,49±0,04
PT-09	19,38±0,01	8,43±0,74	12,79±0,56	13,9±0,07
PT-10	207,4±2,2	107,9±3,7	149,6±2,7	157,6±1,1
PT-12	100,4±1,0	138,2±4,1	117,8±1,9	119,32±0,50
PT-14	19,21±0,25	12,21±1,6	15,3±1,0	15,71±0,13
PT-16	9,2±1,7	13,70±0,59	11,22±1,0	11,44±0,85
PT-17	21,05±0,74	24,90±0,74	22,89±0,53	22,98±0,37
PT-18	33,64±0,87	19,1±1,9	25,3±1,3	26,36±0,44

Tabela 6.11 Valor da concentração de atividade de ^{222}Rn das águas superficiais da região urano-fosfática do nordeste do Brasil

CONCENTRAÇÃO DE ^{222}Rn (Bq/L)				
LOCAL	período	período	média	média
	de seca	de chuva	geométrica	aritmética
Rios ou Riachos				
RS-01	7,5±1,2	5,0±1,4	6,17±0,99	6,29±0,65
RS-02	133,4±2,4	85,6±1,0	106,87±1,2	109,5±1,2
RS-04	6,44±0,51	2,48±0,14	3,99±0,20	4,46±1,25
RS-05	5,4±1,1	1,6±0,63	2,97±0,65±	3,51±0,57
RS-08	27,8±2,7	17,9±2,5	22,3±1,9	22,8±1,3
RS-11	33,7±3,7	24,80±0,21	28,9±1,6	29,3±1,7
RS-12	6,07±0,59	4,0±1,1	4,95±0,72	5,06±0,30
Fontes				
RS-03	315,27±0,41	304,0±1,5	308,62±0,80	309,67±0,20
RS-06	6,03±0,14	12,8±1,4	8,80±0,51	9,43±0,07
RS-07	197,13±0,52	208,7±1,9	64,1±3,07	109,00±0,26
RS-09	68,32±0,68	51,0±1,7	59,0±1,1	59,65±0,34
RS-13	131,3±3,1	121,4±1,2	126,2±6,3	126,3±1,6

Na figura 6.17 é mostrada a curva de distribuição das concentrações de ^{222}Rn da região fosfática de Pernambuco.

As maiores concentrações de radônio foram encontradas no lençol freático. Este mesmo comportamento foi verificado no estudo hidrogeoquímico das fontes de Águas da Prata¹⁰⁵, no estado de São Paulo. As águas subterrâneas dos lençóis menos profundos apresentam maiores concentrações do que os mais profundos devido à difusão preferencial do radônio para a superfície terrestre.

Aparentemente, os recursos hídricos superficiais apresentam concentrações mais elevadas do que os lençóis semi-confinados; contudo ao ser feita a distinção entre concentrações de rios, lagos e lagoas com o das fontes surgentes, referenciadas na tabela do anexo A, verifica-se que a média das concentrações dos primeiros é de 31,5 e 20,2 Bq/L para a época de seca e de chuva. Esses valores são inferiores aos das concentrações encontradas no lençol semi-confinado. De um modo geral as concentrações superficiais são baixas pelo grande poder de emanação do radônio. As coletas realizadas nos pontos de surgência das fontes, caracterizadas por águas com pouco tempo de ocorrência na superfície terrestre, apresentam concentrações médias de 143,6 e 139,3 Bq/L para os respectivos períodos. Esses valores estão bem próximos das médias encontradas para o lençol freático, o que sugere que essas fontes são pontos de descarga do lençol.

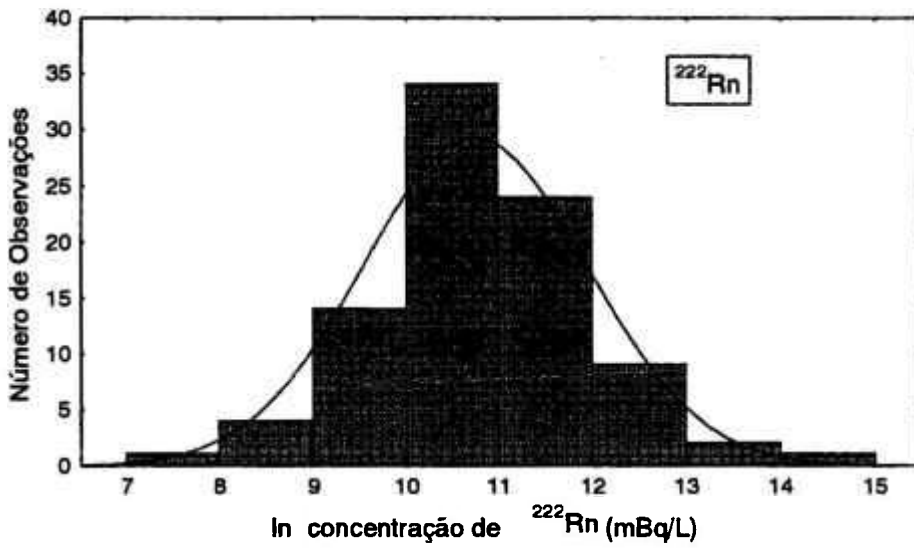


Figura 6.17 Curva de distribuição das concentrações de ²²²Rn dos recursos hídricos da região urano-fosfática do nordeste

Testes estatísticos (teste de Student) aplicados aos conjuntos de dados mostraram que não existem diferenças significativas entre as concentrações encontradas nos dois períodos de coleta; contudo, analisando tais médias, nota-se que as do período de chuva são sempre inferiores as do período de seca. Na figura 6.18 são apresentados os desvios das concentrações para os diversos pontos.

A distribuição das concentrações de ^{222}Rn comporta-se como uma lognormal, comprovada pelo teste de aderência (figura 6.9).

Foi observada também a inexistência de correlações entre as concentrações de ^{222}Rn e os parâmetros físico-químicos bem como das concentrações de ^{222}Rn com urânio e ^{226}Ra . Esse mesmo comportamento foi verificado em outros trabalhos¹⁰⁵ e pode ser explicado pelas características do radônio de ser um gás nobre (Tabela 6.12).

As concentrações de ^{222}Rn encontradas são cerca de três ordens de grandeza superiores às concentrações de ^{226}Ra . A relação média entre o ^{222}Rn e o ^{226}Ra foi 1898 e a máxima relação foi de 42 772. Isto é explicado pelo fato do radônio na água é decorrente do decaimento do rádio presente, além da contribuição do próprio elemento que é emanado da matriz sólida do aquífero e absorvido pela água.

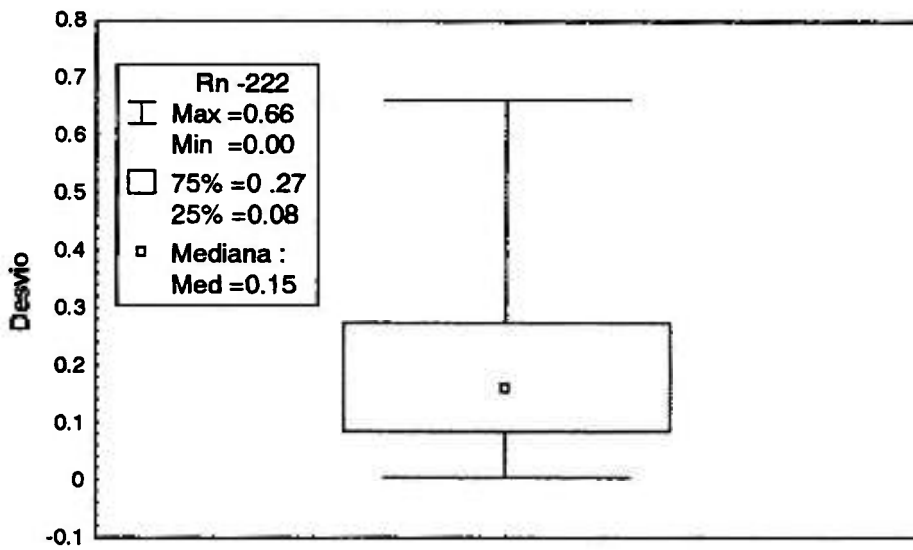


Figura 6.18 Desvio das concentrações de ^{222}Rn em relação ao valor médio

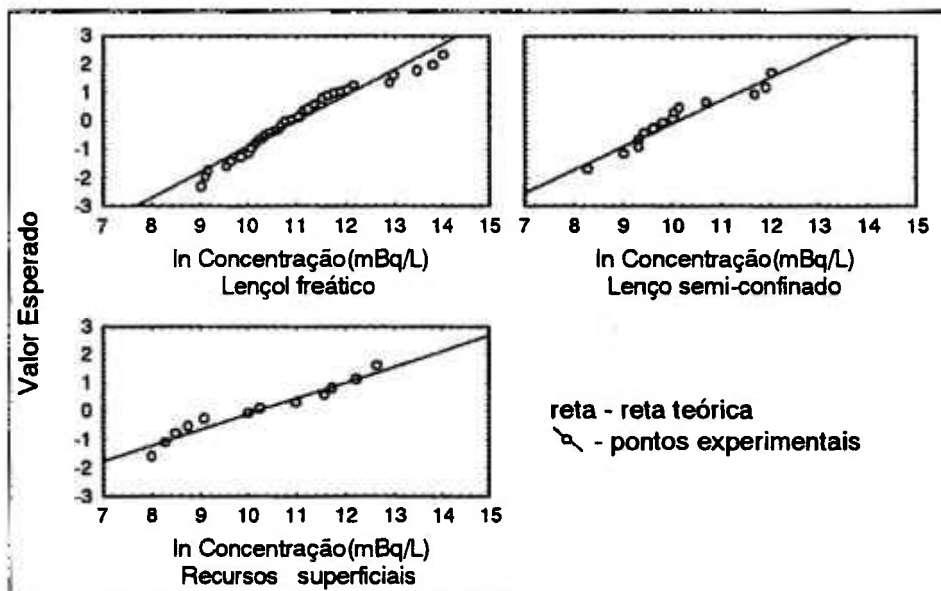


Figura 6.19 Desvios da distribuição normal teórica e experimental do logaritmo das concentrações de ^{222}Rn

Tabela 6.12 Correlações entre as concentrações de ^{222}Rn e os parâmetros físico-químicos das águas da região urano-fosfática de Pernambuco

Parâmetro	Lençol Freático		Geral	
	r	p	r	p
Dureza	0,01	0,945	-0,06	0,652
pH	0,18	0,259	0,13	0,184
Resistividade	-0,14	0,369	0,11	0,414
Resíduo Seco	-0,02	0,904	-0,05	0,662
Ca^{2+}	0,14	0,384	0,09	0,486
Mg^{2+}	-0,07	0,649	-0,12	0,378
Na^+	-0,08	0,609	-0,05	0,681
K^+	-0,09	0,587	-0,11	0,421
Cl^-	-0,07	0,668	-0,02	0,903
SO_4	0,23	0,138	0,10	0,447
HCO_3	-0,07	0,639	-0,14	0,301

Verifica-se que todos os pontos de coleta da região urano-fosfática de Pernambuco apresentam concentrações superiores ao nível recomendado de máxima concentração (MrCL) da USEPA (3,7 Bq/L)⁸⁸. Este nível é obtido a partir da estimativa de uma probabilidade de 10^{-4} de incidência de câncer. Obviamente os valores de referência da norma brasileira (0,1 Bq/L)⁹⁹ e o valor de registro (3,7 Bq/L)⁵⁰ são também superados.

As maiores concentrações de ^{222}Rn no planeta são encontradas nos poços perfurados na região cristalina da Finlândia¹⁰¹, onde a média é de aproximadamente 1020 Bq/L e o maior valor encontrado 77 000 Bq/L; contudo, poços escavados em regiões sedimentares do mesmo país apresentam uma média de 92 Bq/L. Concentrações de ^{222}Rn em águas superficiais da Eslovênia¹⁰⁶ são de cerca de 0,7 Bq/L. No norte da Itália, a concentração varia na faixa de 0,095 a 0,5 Bq/L, na Rússia, de 0,2 a 2,8 Bq/L e na Índia, em regiões próximas de Calcutá, de 0,02 a 0,06 Bq/L. Nas regiões fosfáticas da Carolina do Norte¹⁰³ foi encontrada nos suprimentos de água para a população concentração média de 7,3 Bq/L, estando a faixa de variação entre 0,22 e 212 Bq/l.

Observou-se que, excetuando-se a região cristalina na Finlândia¹⁰¹, os níveis de ^{222}Rn encontrados nas águas consumidas pela população da região em estudo de Pernambuco mostram concentrações superiores às regiões citadas.

6.5 Ingestão de Urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn

Para a avaliação da ingestão de urânio e ^{226}Ra associados ao consumo de água, foi inicialmente realizado um levantamento da quantidade de água consumida em 10 residências da área de estudo. Os dados obtidos mostraram um consumo per capita variando de 1 a 4 L diários. Em decorrência desta grande dispersão de resultados, inclusive numa mesma residência, foi adotado o valor recomendado pela EPA de 2 L diários. Este valor, apesar de ser superior aos adotados por outros autores, é coerente para o presente trabalho; a área de estudo está numa região tropical e a atividade principal da população local é a agricultura, o que exige grande esforço físico e conseqüentemente contribui para o aumento do consumo de água. Este valor, levando em consideração a temperatura local, de 27 a 35 °C durante o dia, está na faixa de consumo recomendada pela ICRP 23, para o homem referência¹⁰⁷.

O cálculo da ingestão de ^{222}Rn exige uma análise adicional em virtude da sua grande capacidade de emanação. Os valores das concentrações deste radionuclídeo variam de acordo com o modo de utilização da água. Verifica-se que a taxa de liberação é função da superfície e da duração do contato entre a água e o ar, da temperatura da água e da agitação durante o manuseio. GESELL e PRICHARD¹⁰⁸ mostraram que o ^{222}Rn é liberado da água em temperaturas inferiores a

20 °C a uma taxa de aproximadamente de 0,15% por minuto e quando ocorre a agitação da água as percentagens de liberação podem assumir valores 20 vezes superiores. A liberação é muito mais rápida com o aumento da temperatura e ao alcançar o ponto de ebulição o radônio é totalmente liberado da água. Deste modo as águas usadas para o preparo de café, chá, sopa e alimentos cozidos são isentas de radônio; nas bebidas que necessitem de agitação no seu preparo ele é parcialmente liberado. Assim, para o cálculo da quantidade de ^{222}Rn ingerida, foi adotado o valor recomendado da EPA de 1 L diário de água.

Para o cálculo da ingestão anual de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn foi adotada a média aritmética geral dos valores das concentrações dos dois períodos de coleta. Este mesmo procedimento foi utilizado por WATSON et al³⁷. que, apesar de constatar que os valores das concentrações dos radionuclídeos seguiam uma distribuição lognormal, consideraram ser mais conservativo a adoção da média aritmética.

Os valores das ingestões de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn para os recursos hídricos disponíveis para a população uranofosfática foram obtidos por meio da equação B.6 (Anexo B) e das concentrações da tabela 6.13. Estes valores são mostrados na tabela 6.14.

Tabela 6.13 Valores da concentração de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn das águas da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

ORIGEM	CONCENTRAÇÃO					
	Urânio (mBq/L)		^{226}Ra (mBq/L)		^{222}Rn (Bq/L)	
	média*	máxima	média*	máxima	média*	máxima
Lençol. freático	23,4	204	334,0	5063	123,5	1255
Lençol semi-confinado	41,8	180,5	240,6	1061	46,3	168,7
Superficial	11,5	45,6	73,9	337,6	74,1	310
Geral**	25,0	204	282,2	5063	104,7	1255

Nota:

* - Média aritmética das concentrações dos radionuclídeos para todos os pontos de coleta.

** - Todos os recursos hídricos disponíveis para a população sem considerar a origem da captação.

Tabela 6.14 Valores da ingestão anual de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn decorrente do consumo de água da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

ORIGEM	INGESTAO (Bq/ano)					
	Urânio		^{226}Ra		^{222}Rn	
	média	máxima	média	máxima	média	máxima
Lençol freático	17,1	148,9	243,8	3696	$4,51 \times 10^4$	$4,58 \times 10^5$
Lençol semi-confinado	30,5	131,8	175,6	774,5	$1,69 \times 10^4$	$6,16 \times 10^4$
Superficial	8,4	33,3	53,9	246,4	$2,70 \times 10^4$	$1,13 \times 10^5$
Geral*	18,2	148,9	206	3696	$3,82 \times 10^4$	$4,58 \times 10^5$

Nota:

*-Todos os recursos hídricos disponíveis para a população sem considerar a origem da captação.

Trabalho realizado por FISENE et al²⁶. referente à ingestão de radionuclídeos nos residentes da cidade de Nova York, encontrou 996,08 mBq anuais para urânio e 208 mBq anuais para ²²⁶Ra . Estes valores são bem inferiores aos valores das ingestões encontradas na região urano-fosfática do Nordeste.

6.6 Avaliação da Dose

A avaliação da dose equivalente comprometida em decorrência da ingestão de urânio e ²²⁶Ra foi obtida a partir equação B.5 (anexo B), com os fatores de conversão de dose mostradas na tabela B.1 e os valores da ingestão média anual da tabela 6.14. Para o ²²²Rn, a dose foi estimada baseada no modelo biocinético desenvolvido por Crawford-Brown⁵⁸.

As doses equivalentes comprometidas médias foram determinadas para os órgãos de deposição. Para a avaliação da dose efetiva aplicou-se a equação B.3 com os fatores de ponderação da ICRP 60¹.

Nas tabelas 6.15, 6.16 e 6.17 estão apresentados os valores das doses equivalentes para os órgãos de deposição, respectivamente para urânio ²²⁶Ra e ²²²Rn. Na tabela 6.18 são mostradas as doses efetivas correspondentes.

Tabela 6.15 Dose equivalente comprometida nos órgãos de deposição decorrente da ingestão de urânio pelo consumo de água da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

ORIGEM	Dose equivalente comprometida H_r (mSv/ano)					
	Ossos		Rins		Pulmões	
	média	máxima	média	máxima	média	máxima
Lençol freático	$0,73 \times 10^{-3}$	$0,64 \times 10^{-2}$	$0,31 \times 10^{-3}$	$0,27 \times 10^{-2}$	$0,17 \times 10^{-5}$	$0,15 \times 10^{-4}$
Lençol semi-confinado	$1,29 \times 10^{-3}$	$0,57 \times 10^{-2}$	$0,55 \times 10^{-3}$	$0,24 \times 10^{-2}$	$0,30 \times 10^{-5}$	$0,13 \times 10^{-4}$
Superficial	$0,36 \times 10^{-3}$	$1,43 \times 10^{-3}$	$0,15 \times 10^{-3}$	$0,59 \times 10^{-3}$	$0,82 \times 10^{-6}$	$0,33 \times 10^{-5}$
Geral*	$0,78 \times 10^{-3}$	$0,64 \times 10^{-2}$	$0,33 \times 10^{-3}$	$0,27 \times 10^{-2}$	$0,18 \times 10^{-5}$	$0,15 \times 10^{-4}$

Nota:

*-Todos os recursos hídricos disponíveis para a população sem considerar a origem da captação.

Tabela 6.16 Dose equivalente comprometida nos órgãos de deposição decorrente da ingestão de ^{226}Ra pelo consumo de água da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

ORIGEM	Dose equivalente comprometida H_T (mSv/ano)					
	Ossos		Pulmões		Tireóide	
	média	máxima	média	máxima	média	máxima
Lençol freático	1,69	25,0	$0,22 \times 10^{-1}$	0,34	$0,22 \times 10^{-1}$	0,34
Lençol semi-confinado	1,21	5,4	$0,16 \times 10^{-1}$	$0,71 \times 10^{-1}$	$0,16 \times 10^{-1}$	$0,71 \times 10^{-1}$
Superficial	0,37	1,7	$0,49 \times 10^{-2}$	$0,22 \times 10^{-1}$	$0,49 \times 10^{-2}$	$0,22 \times 10^{-1}$
Geral*	1,42	25,0	$0,19 \times 10^{-1}$	0,34	$0,19 \times 10^{-1}$	0,34

Nota:

*-Todos os recursos hídricos disponíveis para a população sem considerar a origem da captação.

Tabela 6.17 Dose equivalente comprometida nos órgãos de deposição decorrente da ingestão de ^{222}Rn pelo consumo de água da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

ORIGEM	Dose equivalente comprometida H_T (mSv/ano)					
	Estômago		Intestino		Pulmões	
	média	máxima	média	máxima	média	máxima
Lençol freático	13,5	137	4,0	41	0,30	3,10
Lençol semi-confinado	5,1	18	1,5	5,5	0,20	0,41
Superficial	8,1	34	2,4	10	0,18	0,77
Geral*	11,4	137	3,4	41	0,26	3,10

Nota:

*-Todos os recursos hídricos disponíveis para a população sem considerar a origem da captação.

Tabela 6.18 Dose efetiva comprometida decorrente do consumo de água da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

ORIGEM	Dose efetiva comprometida E (mSv/ano)					
	Urânio		²²⁶ Ra		²²² Rn	
	média	máxima	média	máxima	média	máxima
Lençol freático	$0,11 \times 10^{-3}$	$1,0 \times 10^{-3}$	$0,87 \times 10^{-1}$	1,3	1,00	10,8
Lençol semi-confinado	$0,20 \times 10^{-3}$	$0,89 \times 10^{-3}$	$0,63 \times 10^{-1}$	0,27	0,41	1,4
Superficial	$0,36 \times 10^{-3}$	$1,43 \times 10^{-3}$	$0,19 \times 10^{-1}$	0,88	0,65	2,7
Geral*	$1,2 \times 10^{-4}$	$1,0 \times 10^{-3}$	$0,74 \times 10^{-1}$	1,3	0,92	10,8

Nota:

*-Todos os recursos hídricos disponíveis para a população sem considerar a origem da captação.

No trabalho realizado por Amaral¹⁰⁹ para verificar a modificação da exposição à radiação natural devido às atividades agrícolas e industriais no planalto de Poços de Caldas, foi encontrada uma dose equivalente comprometida efetiva média de $2,7 \times 10^{-3}$ mSv/ano em decorrência da ingestão de água. Esse valor é bem inferior aos encontrados no presente trabalho. Vale ressaltar que o valor encontrado por esse autor refere-se exclusivamente ao consumo de águas superficiais.

Em fontes de águas minerais na região de Águas de Prata em São Paulo¹¹⁰, foram obtidas para ^{226}Ra , doses efetivas na mesma faixa de grandeza da região fosfática do Nordeste.

Na região fosfática do sudoeste da Flórida³⁴ foram estimadas doses efetivas em decorrência da ingestão de ^{226}Ra na água de 0 a 0,1 mSv/ano para poços públicos e de 0 a 1,9 mSv/ano para poços privados. Portanto, como pode-se verificar, as doses estimadas têm a mesma ordem de grandeza das doses da região fosfática de Pernambuco.

Na Finlândia¹⁰¹, numa região rica em pegmatita e com embasamento granítico, doses efetivas médias em decorrência da ingestão de água de poços tubulares e poços escavados superficialmente foram de 1,2 e 0,11 mSv/ano para o ^{222}Rn , 0,21 e 0,10 mSv/ano para o urânio e 0,14 e 0,06 mSv/ano para o ^{226}Ra .

6.7 Estimativas de Risco

Para a estimativa de risco feita para os três radionuclídeos ingeridos ao beber água foi verificado que para o urânio e o ^{226}Ra o órgão de deposição com maior dose equivalente é a superfície do osso, enquanto que o ^{222}Rn ao ser ingerido o órgão de deposição de maior dose equivalente é o estômago^{88,111}.

Considerando que as doses do urânio são cerca de duas ordens de grandeza inferiores às do ^{226}Ra e, ainda, que vários especialistas reconhecem que o tratamento de risco do urânio deve ser baseado na sua toxicidade química e não na radiotoxicidade^{8,15,28,111}, foram determinados somente os riscos decorrentes da ingestão do ^{226}Ra e ^{222}Rn .

6.7.1 Risco de ingestão do ^{226}Ra

O maior aumento da incidência de câncer pela ingestão do ^{226}Ra tem se manifestado em dois tipos de câncer de ocorrência natural relativamente baixa: o carcinoma de crânio e o sarcoma de osso, com incidência natural de 375 e 700 casos por milhão de habitantes, respectivamente^{28,111}.

Para a determinação da estimativa de carcinoma de crânio utilizou-se o formalismo descrito no capítulo 5. A quantidade de ^{226}Ra transferida para o sangue durante o

período de vida adotado⁹² de 65 anos, com o tempo latente de 10 anos, foi de 2379,3 Bq (Equação 5.5). A taxa de risco até o fim da vida é de $1,03 \times 10^{-6}$ /ano (Equação 5.4), que corresponde a um risco médio de $0,5 \times 10^{-6}$ /ano (Equação 5.6).

Estes valores correspondem a 27 mortes por um milhão de pessoas, dando um acréscimo de 7% neste tipo de câncer por incidência natural.

No caso da incidência de sarcoma de osso, para a mesma expectativa de vida de 65 anos, com um tempo de acumulação de 60 anos e um período latente de 5 anos recomendados pelo formalismo descrito no capítulo 5, a transferência de ^{226}Ra para o sangue é de 2595 Bq (Equação 5.10) e o risco até o final da vida é de $0,7 \times 10^{-6}$ /ano (Equação 5.9), correspondendo ao um risco médio de $0,35 \times 10^{-6}$ /ano (Equação 5.11). Isto acarreta uma incidência de 21 casos extra de câncer para 1 milhão de habitantes, correspondendo um aumento 3% dos casos por incidência natural.

6.7.2 Risco de ingestão do ^{222}Rn

Para a estimativa da incidência do risco de câncer em decorrência da ingestão do ^{222}Rn foram utilizados os

procedimentos propostos por Crawford-Brown⁵⁸, considerando uma expectativa de vida de 65 anos para a população da região⁹² e adotando os valores da ICRP 60¹ para o cálculo de risco para efeitos somáticos ponderado para sexo e idade de 0,05 casos/Sv.

Admitindo-se um período latente de 10 anos e utilizando o valor da dose da tabela 6.16, a dose acumulada durante os 55 anos ao longo da vida é de $5,0 \times 10^{-2}$ Sv.

Aplicando o fator citado para efeitos somáticos, calculou-se o risco durante a vida como $2,5 \times 10^{-3}$, o que corresponde a um acréscimo de 1,25% da incidência de câncer (admitindo um valor de 15 a 20% casos de câncer, dado fornecido pela Organização Mundial de Saúde¹¹²).

Esses valores obtidos para risco estão, contudo, sujeitos a algumas ponderações sugeridas pelo próprio Crawford-Brown: no modelo não é admitido que o radônio seja exalado do estômago para o esôfago. Esta hipótese não retrata a realidade e pode causar um aumento significativo nos cálculos.

Os fatores de ponderação de risco de câncer adotados pela ICRP para o estômago e intestino em decorrência da ingestão de radônio têm um alto grau de incerteza. Recentemente, foram reconhecidas essas discrepâncias e as

estimativas de risco para esses órgãos deverão esperar estudos epidemiológicos futuros. No cálculo de dose não foi levada em consideração a idade, portanto foi admitido como constante o valor da meia-vida em cada compartimento do modelo. Outra hipótese que pode alterar o risco é admitir uma resposta linear dose-risco independente da idade. A combinação desses fatores de incerteza pode ocasionar, no resultado final, um desvio da ordem de 4 a 10.

7 CONCLUSÕES

Tendo em vista os objetivos deste trabalho e de acordo com os resultados obtidos, chegou-se às seguintes conclusões:

As faixas de variação das concentrações de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn foram bastante amplas. Os valores médios das concentrações encontradas para todos os recursos hídricos disponíveis para a população foram de 25 mBq/L para o urânio, de 282,2 mBq/L para o ^{226}Ra e de 104,7 Bq/L para o ^{222}Rn . Todas as distribuições de dados das concentrações seguiram distribuição lognormal e os valores máximos encontrados chegam a ser até duas ordens de grandeza superiores aos valores médios.

Os valores das concentrações de urânio encontrados foram relativamente baixos, indicando pouca mobilidade deste radionuclídeo no sistema avaliado. Entretanto, as concentrações de ^{226}Ra e ^{222}Rn apresentaram valores elevados, superando os encontrados em outras regiões fosfáticas.

A sazonalidade não parece ser um fator determinante na programação das coletas para análise. Os testes estatísticos

realizados durante três ciclos hidrológicos completos indicaram que o comportamento das distribuições de concentrações são independentes da época de coleta.

As correlações significativas obtidas entre as concentrações de urânio e de ^{226}Ra com alguns parâmetros físico-químicos da água, tais como: dureza, resistividade, resíduo seco, valores de pH e as concentrações de Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , Cl^- e HCO_3^- , poderão servir de indicadores de pontos de alta concentração destes radionuclídeos, tendo em vista que tradicionalmente são realizadas as análises dos parâmetros físico-químicos dos poços antes da sua utilização.

Os valores encontrados para a ingestão anual de urânio, ^{226}Ra e ^{222}Rn , em decorrência do consumo de água, foram de 18,2 Bq/ano, 206 Bq/ano e 38215 Bq/ano respectivamente, correspondendo a uma dose efetiva de aproximadamente 1 mSv/ano. Estes valores são superiores aos encontrados no planalto de Poços de Caldas.

A maior contribuição na dose efetiva é decorrente da ingestão do ^{222}Rn . Medidas adicionais de baixo custo, adotadas antes do consumo, como a aeração ou simplesmente a não utilização imediata da água da fonte, contribuirão para a sensível diminuição da dose decorrente do ^{222}Rn .

O consumo de água na região fosfática acarretará um acréscimo de 1,25% dos casos de câncer decorrentes da ingestão do ^{222}Rn . Os acréscimos da incidência de carcinoma de crânio e sarcoma de osso pela ingestão de ^{226}Ra , serão de 7 e 3% respectivamente em relação aos casos normais.

Um dos objetivos alcançados pelo presente trabalho foi a formação de um banco de dados que servirá para avaliações futuras das alterações ambientais causadas por ações antropogênicas (atividades relativas ao uso do solo ou à exploração do fosfato, tendo em vista que a reserva é economicamente viável).

8 FUTUROS TRABALHOS

Para dar continuidade ao estudo na região urano-fosfática do nordeste do Brasil as seguintes considerações foram levantadas:

Em decorrência da grande extensão da região urano-fosfática, sentiu-se a necessidade de ampliar a área de estudos, a fim de localizar pontos onde já existem alterações provocadas pelo homem e avaliar o seu impacto ambiental.

Apesar da concepção arquitetônica local das residências favorecer a boa circulação de ar e evitar assim o acúmulo do ^{222}Rn no ar, devido à emanção do solo, verifica-se que é costume local deixar alguns cômodos totalmente fechados, principalmente os quartos. Deste modo presume-se que possam existir maiores concentrações nestes locais. Assim é importante verificar as concentrações do ^{222}Rn no ar.

Verificou-se, em alguns pontos de coleta com altas concentrações de ^{226}Ra , que a dose efetiva decorrente deste elemento superava a dose efetiva média total. Para o estudo destes pontos é sugerido um acompanhamento especial.

Em virtude das altas concentrações de ^{222}Rn encontradas na área de estudo, sugere-se também uma avaliação das concentrações dos seus descendentes, principalmente do ^{210}Pb e ^{210}Po .

ANEXO A

LOCALIZAÇÃO GEOGRÁFICA DOS POÇOS

Tabela A.1 Localidade, município e coordenadas geográficas dos pontos de coleta de água da região urano- fosfática de Pernambuco

CÓDIGO	LOCALIDADE	MUNICÍPIO	COORDENADAS GEOGRÁFICAS	
			LATITUDE (SUL)	LONGITUDE (WGr)
PA-01	Jaguaribe	Paulista	7°55'16"	34°53'17"
PA-02	Jaguaribe	Paulista	7°55'15"	34°53'37"
PA-03	Jaguaribe	Paulista	7°55'6"	34°53'23"
PA-04	Jaguaribe	Paulista	7°54'31"	34°52'47"
PA-05	Jaguaribe	Paulista	7°55'6"	34°53'24"
PA-06	Jaguaribe	Paulista	7°55'9"	34°53'17"
PA-07	Jaguaribe	Paulista	7°55'3"	34°53'19"
PA-08	Jaguaribe	Paulista	7°55'10"	34°53'23"
PA-09	Jaguaribe	Paulista	7°55'5"	34°53'26"
PA-10	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'17"	34°54'2"
PA-11	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'16"	34°53'54"
PA-12	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'15"	34°54'14"
PA-13	Desterro	Cruz de Rebouças	7°53'4"	34°54'14"
PA-14	Jaguaribe	Paulista	7°54'53"	34°53'16"
PA-15	Jaguaribe	Paulista	7°54'46"	34°54'15"
PA-16	Jaguaribe	Paulista	7°54'52"	34°53'8"
PA-17	Jaguaribe	Paulista	7°54'53"	34°53'11"

Tabela A. 1 (Continuação)

CÓDIGO	LOCALIDADE	MUNICÍPIO	COORDENADAS GEOGRÁFICAS	
			LATITUDE (SUL)	LONGITUDE (WGr)
PA-18	Jaguaribe	Paulista	7°54'58"	34°53'19"
PA-19	Jaguaribe	Paulista	7°54'21"	34°53'20"
PA-20	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'15"	34°53'53"
PA-21	Manjope	Igarassu	7°51'52"	34°54'36"
PA-22	Manjope	Igarassu	7°51'51"	34°54'35"
PA-23	Manjope	Igarassu	7°51'52"	34°54'37"
PA-24	Aconchego	Igarassu	7°51'54"	34°54'46"
PA-25	Jardim Boa Sorte-Manjope	Igarassu	7°51'53"	34°54'34"
PA-26	Santa Barbara	Cruz de Rebouças	7°51'44"	34°54'1"
PA-27	Santa Barbara	Cruz de Rebouças	7°51'51"	34°53'59"
PA-28	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'17"	34°54'5"
PA-29	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'16"	34°54'5"
PA-30	Granja Santo Antonio	Abreu e Lima	7°54'37"	34°52'33"
PA-31	Canaã	Abreu e Lima	7°54'50"	34°53'50"
PA-32	Jaguaribe	Abreu e Lima	7°54'41"	34°53'41"
PA-33	Jaguaribe	Abreu e Lima	7°54'31"	34°53'37"
PA-34	Sítio de Belém	Abreu e Lima	7°54'29"	34°53'38"
PA-35	Manjope	Igarassu	7°51'54"	34°54'47"
PA-36	Cueiras	Cruz de Rebouças	7°51'39"	34°53'55"

Tabela A. 1 (Continuação)

CÓDIGO	LOCALIDADE	MUNICÍPIO	COORDENADAS GEOGRÁFICAS	
			LATITUDE(SUL)	LONGITUDE(WGr)
PA-37	Cueiras	Cruz de Rebouças	7°51'38"	34°53'49"
PA-38	Cueiras	Cruz de Rebouças	7°51'29"	34°53'29"
PA-39	Manjope	Igarassu	7°51'52"	34°54'49"
PA-40	Tejipió	Abreu e Lima	7°53'23"	34°54'26"
PA-41	Tejipió	Abreu e Lima	7°53'24"	34°54'26"
PA-42	Tejipió	Abreu e Lima	7°53'25"	34°54'32"
PA-43	Tejipió	Abreu e Lima	7°53'28"	34°54'38"
PA-44	Sítio Colônia	Cruz de Rebouças	7°52'24"	34°54'36"
PA-45	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'17"	34°54'10"
PA-46	Inhamã	Cruz de Rebouças	7°52'50"	34°54'14"
PA-47	Inhamã	Cruz de Rebouças	7°53'4"	34°53'41"
PA-48	Granja São José-Inhamã	Cruz de Rebouças	7°53'3"	34°53'23"
PA-49	Fazenda Congaçary	Cruz de Rebouças	7°53'8"	34°52'9"
PA-50	Granja Bonfim	Cruz de Rebouças	7°53'14"	34°53'2"
PA-51	Jaguaribe	Paulista	7°54'51"	34°53'14"
PA-52	Forno de Cal	Abreu e Lima	7°54'21"	34°52'1"
PA-53	Manjope	Igarassu	7°51'55"	34°54'47"
PA-54	Jaguaribe	Paulista	7°54'41"	34°53'22"
PA-55	Inhamã	Cruz de Rebouças	7°52'54"	34°53'28"

Tabela A. 1 (Continuação)

CÓDIGO	LOCALIDADE	MUNICÍPIO	COORDENADAS GEOGRÁFICAS	
			LATITUDE (SUL)	LONGITUDE (WGr)
PA-56	Desterro	Abreu e Lima	7°53'32"	34°54'14"
PA-57	Desterro	Abreu e Lima	7°53'37"	34°54'25"
PA-58	Fazenda Tupi	Abreu e Lima	7°53'41"	34°54'12"
PA-59	Timbó	Abreu e Lima	7°55'1"	34°53'57"
PA-60	Timbó	Abreu e Lima	7°54'57"	34°53'55"
PA-61	Timbó	Abreu e Lima	7°54'52"	34°53'58"
PA-62	Inhamã	Cruz de Rebouças	7°52'47"	34°53'26"
PA-63	Forno de Cal	Abreu e Lima	7°54'30"	34°52'4"
PA-64	Granja Simplício	Paulista	7°54'52"	34°53'25"
PA-65	Santa Barbara	Cruz de Rebouças	7°51'49"	34°53'59"
PA-66	Inhamã	Cruz de Rebouças	7°52'57"	34°54'2"
PA-67	Desterro	Abreu e Lima	7°53'34"	34°53'5"
PA-68	Desterro	Abreu e Lima	7°53'25"	34°53'43"
PA-69	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'3"	34°54'4"
PA-70	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'3"	34°54'8"
PT-01	Jaguaribe	Paulista	7°54'56"	34°53'29"
PT-02	Jaguaribe	Paulista	7°55'1"	34°53'41"
PT-03	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'15"	34°54'20"
PT-04	Posto Cidade Nova	Abreu e Lima	7°54'11"	34°54'4"

Tabela A.1 (Continuação)

CÓDIGO	LOCALIDADE	MUNICÍPIO	COORDENADAS GEOGRÁFICAS	
			LATITUDE (SUL)	LONGITUDE (WGr)
PT-05	Posto Cabral	Abreu e Lima	7°54'10"	34°54'4"
PT-06	Posto Cabral	Abreu e Lima	7°53'53"	34°54'7"
PT-07	Churrascaria Água Viva	Abreu e Lima	7°53'46"	34°54'8"
PT-08	CHESF	Abreu e Lima	7°53'24"	34°54'11"
PT-09	Fábrica Volnor	Abreu e Lima	7°53'16"	34°54'13"
PT-10	Desterro	Abreu e Lima	7°53'4"	34°54'14"
PT-11	Fábrica Gerdau	Cruz de Rebouças	7°52'36"	34°54'18"
PT-12	Fábrica Norton	Cruz de Rebouças	7°52'31"	34°54'19"
PT-13	Centro	Cruz de Rebouças	7°52'28"	34°54'19"
PT-14	Desterro	Abreu e Lima	7°51'28"	34°54'28"
PT-15	Fábrica Motogear	Cruz de Rebouças	7°51'28"	34°54'30"
PT-16	Fábrica Nutrimetal	Cruz de Rebouças	7°53'3"	34°54'17"
PT-17	Hospital Colonia	Cruz de Rebouças	7°52'2"	34°54'31"
PT-18	Compesa	Cruz de Rebouças	7°52'28"	34°54'29"
RS-01 ^a	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'11"	34°53'33"
RS-02 ^a	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'15"	34°53'36"
RS-03 ^b	Região da Mina	Cruz de Rebouças	7°52'16"	34°53'36"
RS-04 ^a	Jaguaribe	Abreu e Lima	7°54'41"	34°52'46"
RS-05 ^a	Jaguaribe	Paulista	7°54'33"	34°52'32"

Tabela A 1. (Continuação)

CÓDIGO	LOCALIDADE	MUNICÍPIO	COORDENADAS GEOGRÁFICAS	
			LATITUDE(SUL)	LONGITUDE(WGr)
RS-06 ^b	Sítio de Belém	Paulista	7°54'37"	34°53'44"
RS-07 ^b	Loteamento São Sebastião	Abreu e Lima	7°53'6"	34°54'6"
RS-08 ^a	Inhamã	Cruz de Rebouças	7°53'3"	34°53'33"
RS-09 ^b	Fazenda Santa Rita	Igarassu	7°51'16"	34°53'47"
RS-10 ^b	Granja Santo Antonio	Abreu e Lima	7°54'15"	34°52'12"
RS-11 ^a	Gavoa	Cruz de Rebouças	7°51'51"	34°54'4"
RS-12 ^a	Manjope	Igarassu	7°51'50"	34°54'45"
RS-13 ^b	Desterro	Abreu e Lima	7°53'11"	34°54'18"

Nota:

PA - Poços do lençol freático(Poços do tipo amazonas).

PT - Poços do lençol semi-confinado(Poços do tipo tubular).

RS - Recursos hídricos superficiais,sendo: a -rios ou riachos e b- fontes .

* - As coordenadas geográficas foram obtidas por meio de um GPS(Global Positioning System), marca Garmin modelo-40. A exatidão das medidas, segundo o fabricante, é de um raio inferior a 15 m da posição verdadeira.

ANEXO B

GRANDEZAS DE MEDIDA DAS RADIAÇÕES

As principais grandezas de medida das radiações utilizadas no presente trabalho são assim definidas:

Atividade

É uma grandeza que mede o número de desintegrações de uma amostra radioativa por unidade de tempo. A unidade oficial é o becquerel (Bq), que corresponde a uma desintegração por segundo.

Dose Absorvida

A dose absorvida (D) é definida como o quociente da energia depositada (dE) pela massa (dm) do material absorvedor. A unidade é o Gray.

$$D = \frac{dE}{dm} \quad (B.1)$$

Dose Equivalente

Esta unidade é uma medida da equivalência em energia absorvida pelo tecido biológico, quando se leva em consideração a eficácia biológica relativa de cada tipo de

radiação.

A grandeza dose absorvida não é capaz de avaliar a gravidade em probabilidade de efeitos deletérios à saúde devido à exposição à radiação. Assim a ICRP achou conveniente introduzir uma grandeza que relaciona a exposição à radiação aos efeitos deletérios, particularmente aos efeitos estocásticos tardios e hereditários.

Esta grandeza chamada de dose equivalente (H) é dada por:

$$H = D.Q.N \quad (B.2)$$

Esta grandeza é expressa em Sievert (Sv), cujo valor é dado em J/kg.

O fator de qualidade Q leva em conta a eficiência biológica relativa do tipo da radiação para efeitos estocásticos e N é um fator de ponderação resultante do produto de todos os outros fatores modificadores da dose equivalente (taxa de dose absorvida e seu fracionamento, geometria de irradiação, distribuição do radioisótopo no interior do corpo humano, etc.). Entretanto, para fins de cálculo de doses equivalentes em Proteção Radiológica, deve-se considerar $N = 1$.

Tendo em vista que a relação entre a probabilidade de efeitos estocásticos e a dose equivalente varia para cada órgão ou tecido irradiado, a ICRP¹ definiu uma nova grandeza que permitisse combinar as doses equivalente em diferentes tecidos ou órgãos com os efeitos estocásticos de todos. Esta grandeza foi denominada de dose efetiva E, representada por:

$$E = \sum_T W_T H_T \quad (B.3)$$

onde H_T é a dose equivalente (Sv) no tecido ou órgão T e W_T representa a fração de contribuição para o risco estocástico total decorrente do tecido ou órgão T, quando o corpo é irradiado uniformemente.

No caso da irradiação de tecidos ou órgãos devido a radionuclídeos incorporados quando a deposição da energia ocorre com o decaimento do radionuclídeo, a ICRP criou uma grandeza subsidiária, denominada dose equivalente comprometida, definida inicialmente para trabalhadores ocupacionalmente expostos à radiação (ICRP 1977)⁹³ e posteriormente para indivíduos do público (ICRP 1989)¹¹³ por:

$$H_T = \int_{t_0}^{t_0 + \tau} \dot{H}(t) \cdot dt \quad (B.4)$$

para uma única incorporação de material radioativo no tempo t_0 onde, $\dot{H}(t)$ é a taxa equivalente dose no tempo t e τ tempo de

integração. Quando o período de integração não é especificado, adota-se 50 anos para adulto e 70 para criança.

Quando o radioisótopo é incorporado de maneira sistemática¹¹⁴, por meio de inalação e ingestão de alimentos ou água, a dose equivalente comprometida é definida por:

$$H_{ri} = A_r FCD_{ri} \quad (B.5)$$

H_{ri} - dose equivalente comprometida pela ingestão do radionuclídeo r no órgão i .

A_r - atividade anual ingerida do radionuclídeo r

FCD_{ri} - fator de conversão de dose por ingestão ou inalação do radionuclídeo r no órgão i .

No caso da ingestão de água, quando a concentração do radionuclídeo é determinada na fonte de suprimento, é necessária a correção do decaimento do radioisótopo por:

$$A_r = UC_r \exp(-\lambda_r t), \quad (B.6)$$

onde:

U = quantidade de água ingerida por ano;

C_r = concentração do radionuclídeo r ;

t = tempo médio decorrido entre a captação e a utilização da água.

Na tabela B.1 são mostrados os valores dos fatores de conversão de dose para ingestão de urânio¹¹⁵, ²²⁶Ra¹¹⁵ e ²²²Rn⁵⁸.

Tabela B.1 Fatores de conversão de dose para ingestão para órgãos individuais e de corpo inteiro

Órgão	FATORES DE CONVERSÃO DE DOSE		
	(Sv/Bq)		
	Urânio	²²⁶ Ra	²²² Rn
Ossos	$4,31 \times 10^{-8}$	$6,93 \times 10^{-6}$	-
Pulmões	$9,80 \times 10^{-11}$	$9,16 \times 10^{-8}$	$6,80 \times 10^{-9}$
Rins	$1,80 \times 10^{-8}$	-	-
Tireóide	-	$9,15 \times 10^{-8}$	-
Estômago	-	-	$3,00 \times 10^{-7}$
Intestino	-	-	$8,90 \times 10^{-8}$
Corpo Inteiro	$6,74 \times 10^{-9}$	$3,58 \times 10^{-7}$	$2,40 \times 10^{-8}$

ANEXO C

**PARÂMETROS FÍSICO-QÍMICOS DAS ÁGUAS DA REGIÃO
URANO-FOSFÁTICA DO NORDESTE DO BRASIL**

Tabela C.1 Parâmetros físico-químicos das águas da região urano-fosfática do nordeste do Brasil.

LOCAL	Alc. ^a (°F)	D.T. ^b (°F)	pH	Res. ^c (ohm/cm)	CONCENTRAÇÃO (mg/L)									
					R.S. ^d	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	K ⁺	Fe ³⁺	Cl ⁻	SO ₄	HCO ₃ -OH	NO ₃
PA-01	1,4	2,4	6,8	19000	57	5,6	2,43	4	0,75	<LID	11	3	17,08	0
PA-04	5,0	6,2	7,6	5000	120	18,4	3,88	8,0	1,0	0,4	21	4,1	61	10
PA-07	1,2	2,4	7,04	13000	50	6,4	1,94	5,6	1,25	ND	12	4,5	14,64	3
PA-09	0,4	2,8	6,3	2300	251	5,6	3,4	51	7,25	0,5	90	5	4,88	17,5
PA-10	0	4	3,88	3500	185	6,4	5,83	30	5,4	ND	70	<LID	<LID	22
PA-11	0,8	2,2	7,57	15000	45	8	0,48	5,6	0,2	ND	14	5,5	9,76	0
PA-12	3,2	10	5,7	2600	281	18,4	13,12	44	6,5	<LID	40	3,5	39,04	110
PA-15	2	2,6	7,17	15000	53	5,6	2,91	3	0,6	0,2	9	1,3	24,4	<LID
PA-18	1,2	3,6	6,7	5100	119	4,8	5,83	20,4	1,75	<LID	50	<LID	14,64	3
PA-20	3,6	4,4	6,72	8400	88	16	0,97	5	1,0	ND	10	3,5	43,92	2,5
PA-21	4	6,4	6,15	4000	159	8	10,69	19	1,8	ND	25	1	48,8	40
PA-24	4	7,6	5,87	8800	83	5,6	9,23	2,3	0,5	ND	8	2,2	48,8	3
PA-28	2	5,4	7,6	2500	262	6,4	9,23	49	14,5	0	82	1	24,4	52,5
PA-29	7,2	12,4	5,4	2000	289	28	13,12	50	11,4	1,2	78	1	87,84	90
PA-30	0,4	3,8	5,7	14000	76	3,2	2,43	5	0,75	0	10	3	4,88	12
PA-31	1,6	2,6	6,77	12000	66	6,4	2,43	5,6	0,35	0	16	1,8	19,52	<LID
PA-33	1,2	3	8,15	7000	99	8,8	1,94	9	0,4	ND	19	9	14,64	<LID

Tabela C.1 (Continuação)

LOCAL	Alc. ^a (°F)	D.T. ^b (°F)	pH	Res. ^c (ohm/cm)	CONCENTRAÇÃO (mg/L)									
					R.S. ^d	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	K ⁺	Fe ³⁺	Cl ⁻	SO ₄	HCO ₃ -OH	NO ₃
PA-34	11,6	16,4	7,37	4700	278	48	10,69	7,6	0,85	<LID	44	<LID	141,52	14
PA-36	0,4	2,8	6,07	15000	63	8	1,94	5,4	0,5	ND	12	1,5	4,88	5,5
PA-37	0,2	1	5,62	30000	20	4	<LID	2,2	<LID	ND	7	<LID	2,44	3,5
PA-39	2,4	3,4	9,2	7000	60	11,2	1,45	8	0,7	ND	21	9	<LID	<LID
PA-40	4	5,4	6,13	1600	412	7,2	8,5	116	1,8	ND	140	5	48,8	82,5
PA-44	3,2	4	5,12	8900	86	8	4,86	4	0,8	ND	8	2	39,04	14
PA-45	3,2	2,6	9,10	6500	110	6,4	2,43	25	5	ND	32	<LID	19,52	4,5
PA-46	0,8	5	6,1	2700	231	11,2	5,34	9,6	0,6	<LID	36	1,2	9,76	13,5
PA-47	1	2	5,44	15000	50	5,6	1,45	3	1,25	ND	11	2,5	12,2	<LID
PA-49	0,4	2	6,63	7000	54	3,2	2,91	10	2	ND	27	4	4,88	<LID
PA-50	2,4	3,2	7,53	15000	55	4,8	4,86	3	1	<LID	10	<LID	29,28	<LID
PA-51	1,4	4,6	6,57	4100	128	7,2	6,8	20,4	4,33	<LID	45	11,9	17,08	10
PA-52	39	53,4	7,88	10000	869	59,2	93,79	51,6	1,29	ND	140	36	475,8	11,2
PA-55	5,6	4,6	6,5	6100	127	0,8	10,69	14	3,5	<LID	12	7	68,32	<LID
PA-56	1,6	5	6,5	6400	118	7,2	7,77	13	4,5	<LID	23	8	19,52	20
PA-57	2	4	6,32	8500	89	8	4,86	6	1,7	<LID	11	3	24,4	20
PA-58	2	4,4	6,08	6700	98	5,6	7,29	11	1,3	<LID	20	1,5	24,4	20
PA-59	4	9,4	5,63	2100	366	20	10,69	60	6	<LID	62	16	48,8	120

Tabela C.1 (Continuação)

LOCAL	Alc. ^a	D.T. ^b	pH	Res. ^c	CONCENTRAÇÃO (mg/L)									
	(°F)	(°F)		(ohm/cm)	R.S. ^d	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	K ⁺	Fe ³⁺	Cl ⁻	SO ₄	HCO ₃ -OH	NO ₃
PA-60	4	7,6	7,79	29	257	12	11,17	37	1,8	<LID	55	4,8	48,8	42,5
PA-61	4	6,6	6,03	3300	238	7,2	11,66	34	12,5	<LID	35	19	48,8	60
PA-62	2,4	7,4	6,47	5800	133	12	10,69	12	0,8	<LID	32	11	29,28	0,36
PA-63	3,8	5,2	6,09	6000	105	9,6	6,8	10	0,5	ND	21	5	46,36	<LID
PA-65	<LID	4,8	4,45	2000	273	10,4	5,34	56,2	12,35	ND	92	37,6	<LID	20
PA-67	0,2	1,8	7,22	17000	47	4,8	1,45	3,2	<LID	ND	10	<LID	2,44	10
PA-68	1,2	3,2	6,72	9500	68	9,6	1,94	5	0,2	ND	14	<LID	14,64	12
PA-69	<LID	4,6	4,22	3000	202	9,6	5,34	34	4	ND	68	<LID	<LID	31,2
PA-70	1,2	1,8	6,99	3500	140	7,2	<LID	33	1,25	ND	35	20	14,64	11,5
PT-01	24	25	7,24	1900	417	20,8	48,11	11	6,3	<LID	19	3	292,8	4
PT-04	4,8	6,8	5,98	5400	138	10,4	10,20	10,90	3,5	0,3	26	3,5	58,56	9,5
PT-07	2,8	6	5,5	6700	110	5,6	11,17	10	0,8	<LID	30	6	34,16	8
PT-08	23,2	22	7,5	1800	411	30,4	34,99	15	6	<LID	17	6	283,04	4,5
PT-09	26	25	7,28	1700	449	28	43,74	14	6	<LID	17	6	317,2	3,5
PT-10	6	7,6	5,37	4200	188	13,6	16,8	10	2,2	0,4	39	4,5	73,2	10
PT-12	4,8	7	5,9	3600	181	13,6	8,74	24	2,5	<LID	47	2	58,56	4
PT-14	5,6	6,4	5,9	5600	239	5,6	12,15	11	1,8	<LID	20	7	136	32,5
RS-02	4	2,8	5,3	6500	110	5,6	3,4	15	9,2	0,2	13	5	48,8	8,5

Tabela C.1 (Continuação)

LOCAL	Alc. ^a	D.T. ^b	pH	Res. ^c	CONCENTRAÇÃO (mg/L)									
	(°F)	(°F)			(ohm/cm)	R.S. ^d	Ca ⁺²	Mg ⁺²	Na ⁺	K ⁺	Fe ⁺³	Cl ⁻	SO ⁻² ₄	HCO ₃ -OH
RS-03	2,4	4,6	5,4	4200	151	7,2	6,8	23	1,7	<LID	48	3,2	29,28	6
RS-04	1,6	2	6,7	14000	62	4	2,43	6,6	0,1	1	13	2	19,52	<LID
RS-05	3,4	5,2	5,7	4000	151	6,4	8,74	23,6	0,75	0,5	51	1	41,48	<LID
RS-07	4,4	6,2	7,15	4700	113	12	7,77	7,6	0,85	<LID	22	1,8	53,68	6
RS-09	2,4	3	7,82	5500	127	9,6	1,45	21,6	4,85	ND	26	17,5	29,28	4
RS-13	6,4	6,4	6,64	6000	136	0,8	15,06	9,8	1,7	<LID	10	2,5	78,08	12,5

Nota:

PA -Poços no lençol freático(Poços do tipo amazonas).

PT -Poços no lençol semi-confinado(Poços do tipo tubular).

RS -Recursos hídricos superficiais.

a - Alcalinidade total.

b - Dureza total.

c - Resistividade a 25°C.

d - Resíduo seco a 110°C.

ND -Concentração não determinada.

<LID -Concentração inferior ao limite de detecção.

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection. 1991 (ICRP PUBLICATION 60).
2. NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS. Exposure of the population in the United States and Canada from natural background radiation. Dec. 30, 1987. (NCRP-94).
3. UNITED NATIONS. Sources, effects and risks of ionizing radiation. New York. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1988 (Report to the General Assembly, with annexes).
4. PFEIFER, W. C.; FRANCA, E. P.; RIBEIRO, C. C.; NOGUEIRA, A.R.; LONDRES, H.; OLIVEIRA, A. E. Measurements of environmental radiation exposure dose rates at selected sites in Brazil. Anais da Academia Brasileira de ciências,53:683-691, 1981.
5. AMARAL, E. C. S. Modificação da exposição à radiação natural devido a atividade agrícolas e industriais numa área de radioatividade natural elevada no Brasil. Rio de Janeiro, 1992 (Tese de Doutorado, Universidade Federal do Rio de Janeiro).
6. SAAD, S.; Aspectos Econômicos do Aproveitamento do Urânio Associado aos Fosfatos do Nordeste. Comissão Nacional de Energia Nuclear. 1974. (Boletim nº 7).

7. FOURATI, A.; FALUDI, G. Changes in radioactivity of phosphate rocks during the process of production. J. Radioanal. Nucl. Chem., 125(2):287-93, 1988.
8. AIETA, E. M.; SINGLEY, J. E.; TRUSSELL, A. R.; THORBJARNARSON, K. W.; MCGUIRE, M. J. Radionuclides in drinking water: An overview. J. Am. Water Works Assoc., 144-53, 1987.
9. UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. Final draft for the drinking water criteria document on radon. USA, JUN. 1991, (TR-1242-86).
10. GONZALEZ, A. J. & ANDERER, J. Radiation versus radiation: Nuclear energy in perspective. A comparative analysis of radiation in living environment. IAEA BULLETIN, 31(2): 21-31, 1989.
11. EISENBUD, M. Environmental radioactivity. New York, MacGraw-Hill, 1987.
12. UNITED NATIONS Radiations doses, effects, risks. Nairobi, Kenya. United Nations Environmental Programme, 1985.
13. NATIONAL COUNCIL ON RADIATION PROTECTION AND MEASUREMENTS. Exposures from the uranium series with emphasis on radon and its daughters. March 15, 1984. (NCRP-77).
14. COWART, J. B. & BURNETT, W. C. The distribution of uranium and thorium decay-series radionuclides in the environment - A review. J. Environ. Qual., 23:651-662, 1994.

15. WRENN, M. E.; DURBIN, P. W.; WILLIS, D. L. The potential toxicity of uranium in water. J. Am. Water Works Assoc., 74(4): 177-84, 1987.
16. REEDER, W. S.; HITCHON, B.; LEVINSON, A. A. Hydrogeochemistry of the surface water of the MacKenzie river drainage basin. Canada - I. Factors controlling inorganic composition. Geochim. Cosmochim. Acta, 139:224-26, 1972.
17. CHERDINTSEV, V. V. Uranium-234. Jerusalem, Wrener Brindery Ltd., 1971.
18. ROSHOLT, J. N.; GARNER, E. L., SHIELDS, W. R. Fractionation of uranium isotopes and daughter products in weathered granitic and uranium - bearing Sandstone, wind river drainage basin region Wyoming. U.S. Geol. Surv. Prof., 501(B): 84-87, 1964.
19. THUMBER, D. L. Anomalous $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ in nature. J. Geophys. Res., 67:4518-4520. 1962.
20. HURSH, J. B. & SPOOR, N. L. Uranium, plutonium and transplutonic elements. New York, Springer Verlag, 1973.
21. COTHERN, C. R. & LAPPENBUSCH, W. L. Drinking-water contribution to natural background radiation. Health Phys., 50(1):33-47, 1986.
22. HAMILTON, E. L. The concentration of uranium in man and his diet. Health Phys., 48(5):601-33, 1985.
23. COTHERN, C. R. & LAPPENBUSCH, W. L. Occurrence of uranium in drinking water in the U.S. Health Phys., 45(1):89-99, 1983.

24. LAURIA, C. D. & GODOY, M. J. Determinação de ^{238}U , ^{239}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th , ^{226}Ra e ^{226}Ra em águas minerais do planalto de Poços de Caldas. Ciência e Cultura, 40(9):906-908, 1988.
25. WRENN, M. E.; DURBIN, P. W., HOWARD, B.; LIPSZTEIN, J.; RUNDO, J.; STILL, E. T.; WILLIS, P. L. Metabolism of ingested U and Ra. Health Phys., 48(5):601-633, 1985.
26. FISENE, I. M.; WELFORD, G. A. Natural U concentration in soft tissues and bone of New York city residents. Health Phys., 50:739, 1986.
27. UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. Drinking water criteria document for uranium. USA, JUN. 1991.
28. MAY, C. W.; ROWLAND, R. E.; STEHEY, A. F. Cancer risks from the lifetime intake of Ra e U isotopes. Health Phys., 48(5):635-47, 1985.
29. ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. National interim primary drinking water regulations, Office of Water Supply. 1975 (EPA-57019-76-003).
30. COMISSÃO NACIONAL DE ENERGIA NUCLEAR. Diretrizes básicas de radioproteção. julho 1988. (CNEN-NE-3.01).
31. WILLIAMS, A. R. & KIRCHMANN, R. J. Radium, a historical introduction. INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. The environmental behaviour of radium. Vienna 1990. V. I, C.1-1 (Technical Report Series, 310).
32. MOLINARI, J. & SNOOGRASS, W. J. The chemistry and radiochemistry of radium and the other elements of the uranium and thorium natural decay series. INTERNATIONAL

- ATOMIC ENERGY AGENCY. The environmental behaviour of radium. Vienna 1990. (Technical Report Series, 310)
33. KIRBY, H. W. & MURREL L. S. The radiochemistry of radium. U.S.A., National Academy of Sciences, Dec. 1964. (Nuclear Science Series NAS-NS 3057).
34. CECH, I. M.; PRICHARD, H. M.; MAYERSON, A.; LEMMA, M. Pattern of distribution of radium 226 in drinking water of Texas. Water Resour. Res., 23(10):1887-1995, 1987.
35. TANNER, A. B. Physical and chemical controls on the distribution of ^{226}Ra and ^{222}Rn near Great Salt Lake, Utah. In: ADAMS, J. A. S. & LOWDER, M. W., Eds. The natural radiation environment. Chicago, Ill, University Chicago Press, 1964, p. 161-179.
36. BENES, P.; OBRZALEK, M.; CEJCHANOVA, M. The physiochemical forms of traces of radium in aqueous solutions containing chlorides, sulphates and carbonates. Radiochem. Radioanal. Lett., 50(4):277, 198
37. WATSON, A. P.; ETNIER, E. L.; McDOWELL-BOYYER, L. M. ^{226}Ra in drinking water and terrestrial chains: transfer parameters and normal exposure and dose. Nuclear Safety, 25(6):815-829, 1984.
38. UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. Final draft for the drinking water criteria document on radium. USA, JUN. 1991, (TR-1241-85).
39. HESS, C. T.; MICHEL, J. HORTON, T.R. ; PRICHARD, H. M.; CONIGLIO, W, A. The occurrence of radioactivity in public water supplies in the United States. Health Phys., 48(5):553-586, 1985.

40. UNITED NATIONS. Ionizing radiation: levels and effects. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. 1972, New York.
41. FISENE, I. M.; KELLER, H. W.; HARLEY, N. H. Worldwide measurement of ^{226}Ra in human bone: Estimate of skeletal alpha dose. Health Phys., 40:163, 1981.
42. NATIONAL ACADEMY OF SCIENCES Health risks of radon and other internally deposited alpha emitters. Washington, D.C. Committee on the Biological Effects of Ionizing Radiation, 1988. (BEIR IV Report).
43. MUTH, H., & GLÖBEL, B. Age dependent concentration of ^{226}Ra in human bone and some transfer factors from diet to human tissues. Health Phys., 44(1):113-121, 1983.
44. NORRIS, W. P.; SPECKMAN, T. W.; GUSTAFSON, P. F. Studies of the metabolism of radium in man. Am. J. Roentgenol. Radiat. Therapym and Nucl. Med., 78:785, 1985.
45. STEHNEY, A. F. & LUCAS, H. F. Studies on the radium content of humans arising from the natural radium of their environment. Proc. First Conference on Peaceful of Atomic Energy, vol. II, 1956. 49-54.
46. RAABE, O. J.; BOOK, S. A.; PARK, N. J. Bone cancer from radium: canine dose response explains data for humans. Science, 208:61-64, 1980.
47. BEAN, J. A.; ISACSON, P.; HAHNE, R. M. A.; KOHLER, J.; Drinking water and cancer incidence in IOWA. Am. J. Epidemiol., 116(6):924-932, 1982.

48. BARRETO, P. M. C.; CLARK, R. M.; ADAMS, J. A. S. Physical characteristics of ^{222}Rn emanation from rocks, soils, and minerals. Its relation to the temperature and alpha dose. IN: The Natural Radiation Environmental II, U. S. Energy Research and Development Administration, Virginia (Report CONF 720805).
49. DIÁRIO OFICIAL DA UNIÃO. Código de águas minerais. 20/08/1945. (Decreto-lei nº 7841).
50. LONGTIN, J. Occurrence of radionuclides in drinking water a national study. IN: COTHERN, C. R. & REBERS, P. A., eds. Radon, radium and uranium in drinking water. Chelsea, Michigan, Lewis Publishers, 1990, p.17-26.
51. NAZAROFF, W. W.; DOYLE, S. M.; NERO, A. V. ; SEXTRO, R. G. Potable water as a source of airborne ^{222}Rn in U.S. dwellings: a review and assessment. Health Phys., 52(3):281-295, 1987.
52. HESS, C. T.; WEIFFENBACH, C. V.; NORTON, S. A. Variations of airborne and water borne ^{222}Rn in houses in Maine. Environ. Int., 8:59-66, 1982.
53. CROSS, F. T.; HARLEY, N. H.; HOFMANN, W. Health effects and risks from ^{222}Rn in drinking water. Health Phys., 48(5):649-670, 1985.
54. COTHERN, C. R. Estimating the health risks of radon in drinking water. J. Am. Water. Works Assoc., 79(4):153-158, 1987.
55. SUOMELA, M. & KARLOS, H. Studies on the elimination rate and the radiation exposure following ingestion of ^{222}Rn rich water. Health Phys., 23:641-652, 1972.

56. ANDERSSON, I. & NILSSON, I. Exposure following ingestion of water containing ^{222}Rn , in assessment of a radioactivity in man. Vienna, IAEA, 1964.
57. HURSH, J. B.; MORKEN, D. A.; DAVIS, T. P.; LOVAAS, A. The fate of ^{222}Rn ingested by man. Health Phys., 11:465-476, 1965.
58. CRAWFORD-BROWN, D. J. Analysis of the health risk from ingested radon. IN: COTHERN, C. R. & REBERS, P. A., eds. Radon, radium and uranium in drinking water. Chelsea, Michigan, Lewis Publishers, 1990, p.17-26.
59. DUARTE, P. J. Depósitos de fosfatos na formação Maria Farinha. Anais Soc. Biol. Pernamb., Recife, 9:37-42, 1949.
60. OLIVEIRA, P. E.; RAMOS, J. R. A. Contribuição à geologia do município de Olinda, Pernambuco. Boletim Ministério da Agricultura, 138:13-21, 1951.
61. PROJETO RECURSOS DE URÂNIO NAS FOSFORITAS DO NORDESTE Relatório Técnico. Comissão Nacional de Energia Nuclear/Departamento Nacional de Produção Mineral, 1985.
62. MATOSO, S. Q. Hidrologia da região de rocha fosfática sedimentar (tipo fosforito) em Olinda, Pernambuco. Salvador, 1972. (Tese de doutoramento, Universidade Federal da Bahia).
63. ALMEIDA, M. G. Estudo para o aproveitamento do urânio como sub-produto da fosforita do Nordeste do Brasil. São Paulo, 1984. (Dissertação de mestrado, Instituto de Energia Atômica, USP).

64. MENZEL, R. G. Uranium, radium and thorium content in phosphate rocks and their possible radiation hazard. J. Agri. Food, 16(2):231-237, 1968.
65. CRUZ, W. B.; SILVA, A. B.; JARDIM, F. G.; PEIXOTO, C. A. M. Modelo de simulação analítica de exploração do aquífero Beberibe na área Olinda-Igarassu. Rev. Bras. Geocienc., 8:32-50, 1978.
66. EMBRAPA SERVIÇO NACIONAL DE LEVANTAMENTO E CONSERVAÇÃO DE SOLOS. Levantamento exploratório - reconhecimento de solos de Pernambuco. Recife, SUDENE-DRN/Ministério da Agricultura, DNPEA-DPP. 1973 (Boletim Técnico 26).
67. SUDENE Dados pluviométricos mensais do Nordeste: Estado de Pernambuco. Recife, SUDENE, 1990. (Série pluviometria 6).
68. IBGE/SUDENE/CPR - DIVISÃO DE POLÍTICA ESPACIAL. Atlas Nacional - Região Nordeste. Rio de Janeiro, 1985.
69. IBGE - Sinopse preliminar do censo agropecuário Paraíba, Pernambuco. Rio de Janeiro, 1982. IBGE (IX Recenseamento Geral do Brasil - Volume 2).
70. IBGE - Censo demográfico 1991 - Resultados do universo relativos à características da população e dos domicílios. Rio de Janeiro, 1991 (Censo Demográfico 1991 - número 1).
71. PRICE, G. R.; FERRETTI, R. J.; SCHWARTZ, S. Fluorophotometric determination of uranium. Anal. Chem., 25(2):322-331, 1953.
72. LIU, C.; HOLLOWAY, R. W.; AKRIDGE, J. Determination of uranium in an analytical chemistry laboratory. IN:

- COTHERN, C. R.; REBERS, P. A., eds. Radon, radium and uranium in drinking water. Chelsea, Michigan, Lewis Publishers, 1990. p 165-171.
73. BOWER, J. E.; McLEEN, J. W.; McDOWELL, W.J. Uranium assay of phosphate fertilizers and others phosphate materials. Health Physics, 34:345-352, 1978.
74. BARIOS, N.; MOREL, O.; ZLOSILO, M.; SCHLEIN, W. Determination of uranium in aqueous solution by X-ray fluorescence. X-Ray Spectrometry, 7(1):31-32, 1978.
75. CENTANNI, F. A.; ROOS, A. M.; DESESA, M. A. Fluorimetric determination of uranium. Anal. Chem., 28(11), 1956.
76. RANIERE, I. M.; CANTAGALLO, M. C.; VIEIRA, M. F.; IYER, S.; MORATO, S. P. Avaliação do método de fluorimetria por laser na determinação do urânio. São Paulo, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, 1989, (Publicação ipen 26).
77. GERALDO, L.P. Determinação da concentração de urânio em águas pela técnica do registro de traços de fissão. São Paulo, 1977 (Dissertação de Mestrado, Instituto de Energia Atomica, USP).
78. JÖNSSON, G. Indoor radon gas and its detection with Kodak plastic film. Nucl. Tracks. Radiat. Meas., 13:85-91, 1987.
79. VASCONCELLOS, M. B. A. Estudo comparativo dos métodos destrutivos e não destrutivos em análise por ativação de rochas. São Paulo, 1978 (Tese de doutorado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, USP).

80. TAKEIASHI, H. Análise de rádio em água. Rio de Janeiro, 1979 (Monografia. Instituto de Radioproteção e Dosimetria).
81. GOLDIN, A. S. Determination of dissolved radium. Anal.Chem., 33:406, 1961.
82. BURNETT, W.C.; TAI, W. Determination of radium in natural waters by α liquid scintillation. Anal. Chem., 64:1691-1697, 1992.
83. POHL, E.; POHL-RULING, Determination of environmental or occupational ^{222}Rn in air and water and ^{226}Ra in water with feasible and rapid methods of sampling and measurement. Health Phy., 31:343-348, 1976.
84. PRICHARD, H. M.; GESELL, T. F. Rapid measurements of ^{222}Rn concentration in water with commercial liquid scintillation counter. Health Phys., 33:577-581, 1977.
85. UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. Radon in water sampling program. 1979. (EPA/EERF-Manual)
86. HAZIN, C. A. Release of radon from showers and its influence on the balance of radon indoors. Atlanta, 1990. (Ph.D Thesis Georgia Institute of Technology).
87. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. Limits for intakes of radionuclides by workers. 1979 (ICRP Publication 30).
88. CRAWFORD-BROWN, D. J. Cancer fatalities from waterbone radon(radon-222).Risk Analysis,11(1). 1991.

89. DIXON, R. L. Problems in extrapolating toxicity for laboratory animals to man. Environmental Health Perspectives, 13:43-50, 1976.
90. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIATION UNITS AND MEASUREMENTS. Quantities and units in radiation protection dosimetry. 1993. (ICRU Report 51).
91. ROWLAND, R. E., STEHNEY, A. F.; LUCAS, H. F. Dose-response relationships for female radium dial workers. Radiat. Res, 76:368-383, 1978.
92. BRUMINI, R. Câncer no Brasil: Dados Histopatológicos. Ministério da Saúde. 1982.
93. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. Recommendations of the international commission on radiological protection. 1976. (ICRP Publication 26).
94. AMERICAN PUBLIC HEALTH ASSOCIATION & AMERICAN WATER WORKS ASSOCIATION. Standard methods for the examination of water and waster water. 17 ed. Washington, 1989. (APHA).
95. ALTSHULER, B.; PASTERNAK, B. Measures of the lower limit of detection of a radioactivity counter. Health Phys., 9:293-298, 1963.
96. EVANS, R. D. Atomic nucleus. New York, MacGraw-Hill, 1972.
97. COSTA NETO, P. L. DE O. Estatística. São Paulo, S.P., Edgard Blücher, 1977.
98. STAT SOFT. Complete statistic system. Tulsa OK, 1991. (74104).

99. MINISTÉRIO DA SAÚDE. Normas e o padrão de potabilidade da água destinada ao consumo humano. 19/01/1990. (Portaria nº 36/GM).
100. FISENE, I. M.; PERRY, P. M. ; DECKER, K. M.; KELLER, H. W. The daily intake of $^{234,235,238}\text{U}$, $^{228,230,232}\text{Th}$, and $^{226,228}\text{Ra}$ by New York city residents. Health Phys., 53(4):357-367, 1987.
101. SALONEN, L. Natural radionuclides in ground water in Finland. Radiation Protection, 24:163-166, 1988.
102. GASCOYNE, M. High levels of uranium and radium in groundwaters at Canada's Underground Research Laboratory, lac du Bonnet, Manitoba. Health Phys., .:577-591, 1989.
103. WATSON Jr., J. E.; MITSCH, B. F. Ground-water concentrations of ^{226}Ra and ^{222}Rn in North Carolina phosphate lands. Health Phys., 52(3):361-365, 1983.
104. HAVLIK, B. Radioactive pollution of rivers in Czechoslovakia. Health Phys., 19:617-624, 1983.
105. SZIKSZAY, M. Hidrogeoquímica das fontes de Águas da Prata, estado de São Paulo. São Paulo, 1981 (Tese de Livre-Docencia, Instituto de Geociências, USP).
106. KOBAL, I.; MITIC, J. V.; KRISTAN, J.; ANCIK, M.; JERANCIC, S.; SKOFLJANEC, M. Natural Radioactivity of fresh waters in Slovenia, Yugoslavia. Environ. Int., 16:141-154, 1990.
107. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. Report of the task group on reference man. 1975. (ICRP Publication 23).

108. GESSEL, T. F. AND PRICHARD, H. M. The contribuion of radon in tap waters to indoor radon concentrations. 1347-1363, IN:Natural Environmental III conf. 780422, 1980. apud UNITED STATES ENVIRONMENTAL PROTECTION AGENCY. Final draft for the drinking water criteria document on radon. USA, JUN. 1991, (TR-1242-86).
109. 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, Universidade Federal do Rio de Janeiro).
110. OLIVEIRA, J. DE Determinação de ^{226}Ra e ^{228}Ra em águas minerais da região de Águas de Prata. São Paulo, 1992. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, USP).
111. ROWLAND, R. E., STEHNEY, A. F.; LUCAS, H. F. Dose-response for radium-induced bone sarcomas. Health phys.,44(1):15-31, 1983.
112. WORLD HEALTH ORGANIZATION. Cancer in five continents. International Agency for research on Cancer, World Health Organization, Lion, 1982.
113. INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION. Age dependent doses to members of the public from intake of radionuclides. 1989 (ICRP Publication 56).
114. TRANSLATIONS-SAFETY CODES AND GUIDES.GRS. Edition 11.1980.

115. TILL, J. E.;MEYER, H. R. Radiological assessment. A textbook on environmental dose analyses NUREG/CR-3332. ORNL-5968. Washington, 1983.