

LEVANTAMENTO DOS NÍVEIS DA RADIOATIVIDADE NATURAL EM ROCHA NO MUNICÍPIO DE PEDRAS – PE

Cassya Regina Pereira Guimarães

crpg@discente.ifpe.edu.br

Orientador Dr. Ronaldo Faustino da Silva

Ronaldo.faustino@recife.ifpe.edu.br

RESUMO

Dados de atividades específicas de uma amostra de rocha em uma região com anomalia de minério de urânio localizada no município de Pedras, Agreste de Pernambuco. Permitiu avaliar o potencial risco radioativo ao ser humano e ao meio ambiente, formulando condições para definir critérios operacionais e avaliação dos impactos decorrentes da extração e uso dos recursos naturais, definindo padrão radiométrico da área estudada e medidas mitigatórias para evitar a contaminação e exposição. Assumindo a importância da dosimetria radioecológica, ausência de um mapa radiométrico do estado e poucas evidências de estudos da radioatividade ambiental no Brasil. Foi realizado um estudo que tem como principal objetivo avaliar a migração dos radionuclídeos naturais e sua quantificação, aplicando método de análise não destrutiva, fazendo uso da espectrometria gama com detector de elevada resolução (HPGe). As atividades encontradas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , e ^{40}K foram de 682,21 kBq; 1070,05 kBq; 4,12 kBq; 3,89 kBq, respectivamente. Os resultados evidenciaram que os valores de atividades superam em sua totalidade as médias globais estabelecidas pelo Comitê Científico das Nações Unidas para os Efeitos das Radiações Atômicas. A relevância desse estudo permitiu o levantamento dos níveis de radioatividade natural em afloramento rochoso impactado radiologicamente no município definindo à região como área de alto *background* radiométrico, referência para futuras observações radiológicas e comparações entre regiões anômalas no estado de Pernambuco.

Palavras-chave: Monitoração; Radionuclídeos; Radioecologia; Rocha.

ABSTRACT

Specific activity data from rock samples in a region with uranium ore anomaly located in the municipality of Pedras, Agreste of Pernambuco. It made it possible to assess the potential radioactive risk to humans and the environment, formulating conditions for defining operational criteria and assessing the impacts arising from the extraction and use of natural resources, defining a radiometric standard for the area studied

Instituto Federal de Pernambuco. Campus Recife. Curso de Engenharia Civil. 21 de novembro de 2023.

and mitigating measures to avoid contamination and exposure. Assuming the importance of radioecological dosimetry, the absence of a radiometric map of the state and little evidence of studies of environmental radioactivity in Brazil. A study was carried out whose main objective was to evaluate the migration of natural radionuclides and their quantification, applying a non-destructive analysis method, making use of gamma spectrometry with a high resolution detector (HPGe), The activities found for ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , and ^{40}K was 682.21 kBq; 1070.05 kBq; 4.12 kBq; 3.89 kBq, respectively. The relevance of this study allowed the survey of natural radioactivity levels in radiologically impacted rocky outcrops in the municipality, defining the region as an area of high radiometric background, a reference for future radiological observations and comparisons between anomalous regions in the state of Pernambuco.

Keywords: Monitoring; Radionuclides; Radioecology; Rock.

1 INTRODUÇÃO

As primeiras evidências de fontes naturais de radiação foram registradas em 1896, por Henri Becquerel, físico francês que constatou alterações ao revelar filmes fotográficos expostos ao sulfato de potássio-uranila, onde foi atribuída ao urânio tal propriedade.

A radioatividade ambiental está presente na crosta terrestre desde a sua formação, sendo proveniente de fontes naturais e antropogênicas. Em relação à exposição dos indivíduos, as fontes naturais são as mais relevantes, com uma contribuição de cerca de 80% da radiação ambiental. A radioatividade natural é originada a partir da radiação cósmica e de radionuclídeos cosmogênicos, bem como, das radiações terrestres, sendo esta última a mais influente sobre os indivíduos (IAEA, 2021).

As atividades antrópicas e uso dos solos podem promover aumento nas concentrações dos Materiais Radioativos de Ocorrências Naturais (NORM), principalmente na superfície do solo, alterando a radiação de fundo dos ambientes, classificando-os dentro da categoria de Materiais Radioativos de Ocorrências Naturais Tecnologicamente Aumentados (TENORM), cujos níveis podem ser centenas e até milhares de vezes superiores aos valores médios globais (Santos Júnior, 2009).

Solos são considerados as principais fontes de radiação natural, tendo em vista que são originários de rochas, que podem conter níveis anormais de minerais radioativos. A radioatividade desses solos depende essencialmente das condições geográficas e geológicas de cada região (USEPA, 2016), onde esses elementos radioativos contribuem significativamente para aumento da dose de radiação ambiental nos seres humanos, através da contaminação do lençol freático, gerando problemas desde a produção dos alimentos, fazendo-se necessário priorizar estudos radioecológicos na tentativa de definir modelos que expliquem possibilidades estocásticas atribuídas às irradiações, inalações e/ou ingestões desses radionuclídeos (Veiga *et al.*, 2006).

Nas rochas, à medida que estas sofrem intemperismo biogeoquímico, os radioisótopos são deslocados no ambiente, absorvidos por argilominerais e precipitados junto com os óxidos de ferro e alumínio nos solos. Esses processos atmosféricos são governados pelas condições de clima e topografia locais (Cardoso,

2009). Os radionuclídeos liberados na atmosfera passam por processos de mistura e dispersão e se depositam na superfície terrestre (Wasserman; Lauria, 2002).

Entretanto, pesquisas sobre a concentração de U_3O_8 nas rochas cálcio silicáticas anfibolíticas existente no município de Pedra, localizadas na região do agreste semiárido de Pernambuco, na chamada “Bacia Leiteira” do estado, revelaram valor máximo de 22.000 mg.kg-1 de urânio (Magalhães, 1977).

Para se avaliar o nível da radioatividade natural e sua relação com a saúde das populações se faz necessário a determinação das concentrações dos radionuclídeos naturais, precursores e descendentes das séries do Urânio (^{238}U) e do Tório (^{232}Th), assim como, o Potássio (^{40}K), o que permite estabelecer critérios de uso dos recursos naturais e suas diferentes aplicações para o avanço tecnológico e humano. Contudo, pesquisas de monitoração radiométricas e geológicas (INCA, 2021).

Em relação à exposição às radiações por fontes naturais, o radônio merece destaque. Trata-se de um gás natural, sem cheiro, cor ou sabor, que tende a se concentrar em ambientes fechados como minas subterrâneas, residências ou locais de trabalho (INCA, 2021). Uma vez inalado, o radônio é depositado no trato respiratório e está associado ao câncer de pulmão, sendo a segunda causa deste depois do tabagismo (WHO, 2016). Uma forma de se proteger é a manutenção de ambientes ventilados, evitando a concentração desse gás.

Este estudo permitirá definir critérios sobre a radiometria ambiental, servindo de referência para outros estudos e possível resolução de problemas a partir de amparo científico, estabelecendo situação de mitigação para um melhor entendimento sobre o comportamento dos radionuclídeos naturais no solo e, se for o caso, verificar correlações com a saúde pública e o meio ambiente.

2 FUNDAMENTAÇÃO TEORICA

2.1 Rocha

É o material constituinte da crosta terrestre, duro e coeso, formado em linhas gerais por uma associação de minerais distribuídos homoganeamente, sendo por vezes plástico (como a argila) ou móvel (como as areias) e, no limite, líquido (como é o caso do petróleo), representando a união natural de minerais definidos quanto à sua composição química. Algumas rochas são constituídas por um único mineral, mas são consideradas rocha e não mineral porque ocorrem em grandes volumes, formando camadas que podem se estender por dezenas de quilômetros. Essas rochas são chamadas de monominerálicas, um exemplo bastante descrito na literatura é o quartzito formado de quartzo (Paraguassú *et al.*, 2017).

Os minerais presentes em uma rocha podem ser essenciais ou acessórios. Minerais essenciais são aqueles que definem a natureza da rocha. Entretanto, os minerais acessórios são aqueles que aparecem na rocha em quantidades pequenas e que não afetam sua classificação, podendo servir para definir uma variedade de rocha. A estrutura geológica está diretamente relacionada ao seu desgaste e posterior formação do solo, por isso em estudos radioecológicos é de grande importância conhecer os tipos de rochas presentes no local (Santos Junior, 2005; Lepsch, 2016).

Nesse contexto, as rochas podem ser agrupadas em três grandes grupos, conforme o processo de formação: ígneas, metamórficas ou sedimentares. Rochas ígneas e metamórficas constituem 95% da crosta terrestre, sendo os 5% restantes

de rochas sedimentares. As rochas ígneas são compostas por minerais primários que não foram alterados quimicamente desde que se formaram de uma lava fundida e depois solidificada, resultantes da consolidação do magma. Quando ocorrem abaixo da superfície, são formadas rochas intrusivas, como o granito. Quando ocorrem na superfície, dá origem às rochas extrusivas, como o basalto. As rochas ígneas escuras (máficas) são mais ricas em minerais contendo magnésio e ferro, enquanto que as rochas ígneas claras são mais ricas em silício e alumínio (Brady; Weil, 2013).

As sedimentares são rochas que se formam na superfície da crosta terrestre sob temperaturas e pressões relativamente baixas, pela desagregação de rochas pré-existentes seguida de transporte e de deposição dos detritos ou, menos comumente, por acumulação química. Possuem porosidade e permeabilidade, uma marcante estratificação e baixa resistência mecânica. De um modo geral e amplo, as rochas sedimentares mais comuns podem ser divididas em arenosas, argilosas e carbonatadas, estas últimas subdivididas em calcários e dolomitos (Brady; Weil, 2013).

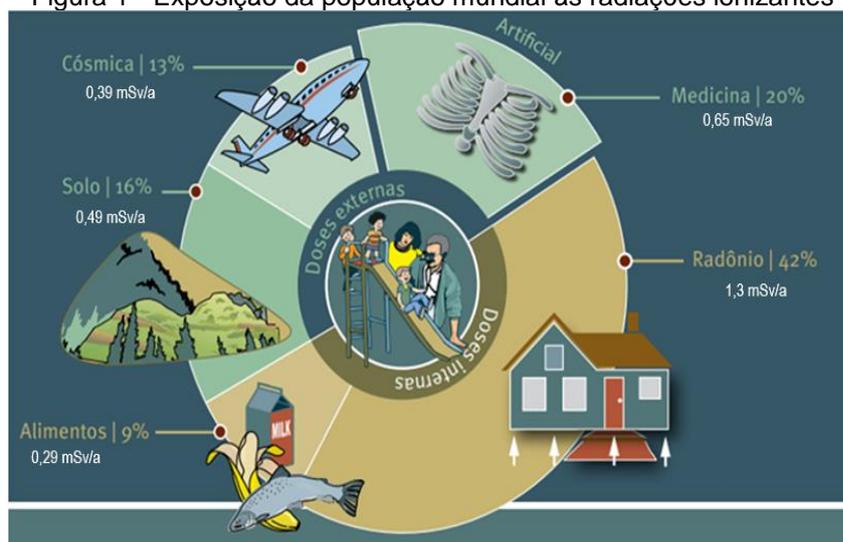
A resistência de uma rocha sedimentar ao intemperismo (processos físicos, químicos e biológicos que alteram seus constituintes) é determinada tanto pelo tipo dos seus minerais dominantes como pelo agente cimentante. A rocha sedimentar é o tipo mais comum (Brady; Weil, 2013).

2.2 Radioatividade

A radioatividade é um fenômeno de origem nuclear, correspondendo à desintegração de determinados núcleos atômicos instáveis com propagação de energia. A radioatividade encontra-se presente no planeta desde a sua formação. De acordo com o *United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation* (UNSCEAR), mais de 80% da exposição à radioatividade ambiental são provenientes das fontes naturais de radiação, enquanto que, aproximadamente 20% tem sua origem em fontes antrópicas (UNSCEAR, 2008), como ilustrado nos detalhes da Figura 1.

As fontes antrópicas são desenvolvidas pelo homem no uso de elementos radioativos para diversas finalidades, como por exemplo, o diagnóstico médico e o ciclo do combustível nuclear, além de outras atividades (UNSCEAR, 2008). As exposições médicas representam a segunda maior contribuição para a exposição do homem à radiação. As principais razões dessa contribuição são as exposições aos raios-X e o desenvolvimento de novos radiofármacos para medicina nuclear (UNEP, 2016).

Figura 1 - Exposição da população mundial às radiações ionizantes



Fonte: Adaptado de UNEP (2016).

Classifica-se como radioatividade natural quando o processo da emissão de energia ocorre de maneira espontânea na natureza. Segundo a UNSCEAR (2008), essas fontes naturais de radiação podem ser agrupadas em três tipos, à radiação cósmica (de origem extraterrestre), radiação cosmogênica (proveniente da interação da radiação cósmica com os átomos presentes na atmosfera) e a radiação terrestre, proveniente dos radionuclídeos naturais existentes na crosta da terra, os chamados de *Naturally Occurring Radioactive Materials* (NORM).

A radiação natural é responsável pela maior contribuição de dose recebida pelos indivíduos, sendo aproximadamente $2,4 \text{ mSv.ano}^{-1}$. Os radionuclídeos naturais são encontrados no ar, na água, em plantas, alimentos, nos solos, nas rochas e nos materiais de construção civil (UNSCEAR, 2008; Mazzilli *et al.*, 2011).

2.3 Radioatividade natural

A radiação cósmica é classificada de acordo com sua origem, energia, tipo e densidade do fluxo de partículas. A radiação cósmica galáctica, a radiação cósmica solar e raios cósmicos que envolvem o planeta Terra são as três fontes principais em termos de exposição sobre o ser humano. O campo magnético terrestre e uma camada de ar de aproximadamente 10.000 kg.m^{-1} , são comparáveis a uma camada de 10 m de espessura de água, que podem blindar a influência radioativa gama e minimizar a exposição à radiação cósmica ao nível do mar, fazendo com que a contribuição desse fenômeno seja de apenas 10% para a exposição à radiação natural (UNSCEAR, 2008).

As fontes radioativas naturais da crosta terrestre que se destacam nos estudos científicos são os radionuclídeos que formam as séries radioativas naturais, o ^{40}K (Potássio) e o ^{87}Rb (Rubídio). Os radionuclídeos de ocorrência natural podem ainda ser classificados como primários e secundários. Os primários são oriundos da formação da terra, que apresenta cerca de 30 radionuclídeos primordiais, com tempo de meia vida acima de 10^8 anos, a maior parte não contribuindo de forma acentuada na exposição do ser humano à radioatividade. Enquanto os secundários

são os que surgem como consequência do decaimento dos primordiais (EISENBUD; GESSEL, 1997).

Os constituintes das três séries radioativas naturais: a série do urânio originada com o ^{238}U (abundância natural: 99,27%), a série do tório com o ^{232}Th (abundância natural: 100%) e a série do actínio, originada com o ^{235}U (abundância natural: 0,72%). Destas séries, o ^{235}U , é a menos detectada devido a pequena porcentagem do isótopo na natureza e de pouca relevância como fonte de radiação natural (Eisenbud; Gessel, 1997; UNSCEAR, 2000). Outros radioisótopos primordiais não pertencentes às séries, mas proveniente do solo e apresentando radioisótopos com baixa ocorrência natural, como no caso do ^{40}K , podem sofrer acumulação nos compartimentos ambientais, provocando preocupação do ponto de vista da proteção radiológica (ver Tabela 1).

Tabela 1 - Alguns radionuclídeos primordiais e seus tempos de meias-vidas físicas

Radionuclídeo	Meia-vida (anos)
^{40}K	$1,26 \times 10^9$
^{87}Rb	$4,8 \times 10^{10}$
^{115}In	$6,0 \times 10^{14}$
^{113}Tc	$1,2 \times 10^{13}$
^{113}Lu	$2,2 \times 10^{10}$
^{180}Ta	$> 1,5 \times 10^{12}$
^{147}Sm	$1,05 \times 10^{11}$
^{50}V	$6,0 \times 10^{15}$
^{138}La	$1,05 \times 10^{11}$

Fonte: UNSCEAR (2000).

A exposição do homem está relacionada principalmente aos radionuclídeos primordiais do solo e ar, e também devido aos raios cósmicos e suas interações com alguns componentes da atmosfera, cujos níveis dependem das condições geológicas de cada área do planeta e da concentração de urânio, tório e potássio presente na rocha de formação do solo (Tzortzis; Tsertos, 2004; Santos Júnior, 2009).

As rochas ígneas de composição granítica são formadas pelo enriquecimento do U e Th, com concentrações médias de 5 mg.kg^{-1} e de 15 mg.kg^{-1} , respectivamente. Já as rochas de composição basáltica ou ultramáficas possuem concentração de urânio menor que 1 mg.kg^{-1} . De modo geral, os altos níveis de radiação estão associados às rochas ígneas e os baixos níveis às rochas sedimentares, a exceção neste último caso são as rochas fosfáticas (UNSCEAR, 2000; Tzortzis; Tsertos, 2004; Santos Júnior, 2009).

As séries naturais do ^{238}U , ^{235}U e ^{232}Th apresentam radionuclídeos de propriedades físicas e químicas distintas, com uma grande diferença em suas meias-vidas. Tais radionuclídeos percorrem o meio ambiente, por vários compartimentos, o urânio tende a ser altamente móvel próximo à rocha de origem, ou pode ser removido das rochas graníticas e pegmatíticas por lixiviação. O tório, não apresenta fácil mobilidade, a não ser por meios mecânicos, como vento ou pelo processo de erosão. O conhecimento da distribuição dos radionuclídeos no ambiente torna-se de

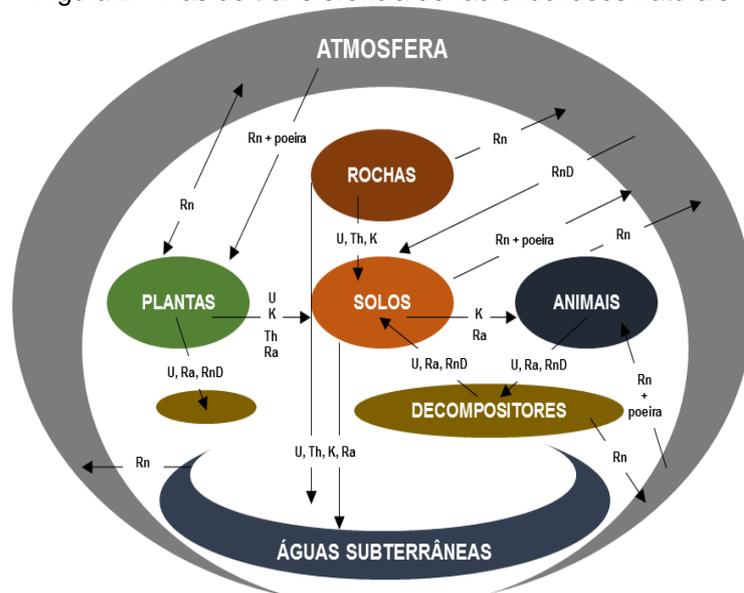
fundamental importância para a avaliação da exposição à radiação por parte do público (UNSCEAR, 2008).

A radiação decorrente dos radionuclídeos naturais, heterogeneamente distribuídos pela litosfera, hidrosfera e atmosfera, juntamente com a radiação cósmica, passam por processos de mistura e dispersão e acabam se depositando na superfície do solo. Mudanças nas condições físico-químicas dos solos podem mobilizar o material, a princípio retido, e favorecer sua assimilação biológica ou migração para sistemas adjacentes através de um ciclo, tornando as rochas e os solos, barreiras geoquímicas, uma vez que retêm a maioria das concentrações radioativas depositada na superfície (Mazzilli; Máduar; Campos, 2011).

Na Figura 2, são ilustradas as vias de transferências utilizadas com frequência para calcular as doses de radiação devida às diversas fontes de radioatividade natural, onde os minerais radioativos que contém U, Th e K estão presentes. Através de vários caminhos, como por exemplo, através da atmosfera, sistemas aquáticos e do solo, cada radionuclídeo contribui para a exposição humana. Os solos absorvem boa parte destes radionuclídeos depositados sobre eles, passando para a vegetação da área e por consequência, essa radiação será transferida através do ecossistema terrestre (Mazzilli; Máduar; Campos, 2011).

Os efeitos climáticos (variabilidade sazonal), o estado de oxidação da água, as concentrações de elementos que possam formar complexos uraníferos ou minerais insolúveis de urânio e a presença de materiais adsorventes de urânio são fatores que afetam a distribuição desses elementos nas águas (Blaise *et al.*, 2005).

Figura 2 - Vias de transferência de radionuclídeos naturais



Fonte: Mazzilli (2011) apud Araújo (2019).

U: Urânio; Th: Tório; K: Potássio; Ra: Rádio; Rn: Radônio; RnD: Radônio e descendentes.

Os níveis de urânio encontrado no solo dependem da geologia local e variam amplamente em alguns miligramas até níveis de vários por cento (%) nos corpos minerais, com uma concentração de atividade média de cerca de 30 Bq.kg^{-1} ($1,2 \text{ mg.kg}^{-1}$) para o urânio em rocha e solo. As ações das águas subterrâneas e de superfícies propiciam a sua distribuição através de mecanismos como lixiviação e erosão eólica do solo. Em contrapartida, urânio em água, solo e ar é absorvido por

plantas e animais. O homem pode estar exposto ao urânio por inalação de partículas do ar, através da absorção pela pele e pela ingestão dele em alimentos e água (UNSCEAR, 2008).

Devido à característica radioativa o ^{238}U , quando em equilíbrio secular, contribui com 48,9% da atividade total de partículas alfa do urânio natural. As concentrações de urânio no meio ambiente (solo, planta, ar e água) podem ser medidas em termo de concentração de radioatividade ($\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$) ou de fração mássica ($\text{mg}\cdot\text{kg}^{-1}$) (IAEA, 2010).

2.4 Mobilidade dos Radionuclídeos Naturais no Solo

A presença dos NORM (Naturally Occurring Radioactive Material) e TENORM (Technologically Enhanced Naturally Occurring Radioactive Material) em solos contribuem de modo considerável para a dose no homem, principalmente porque o solo sustenta ou produz, direta ou indiretamente, a maior parte dos alimentos que o homem consome para viver, além de ser a principal fonte de exposição contínua aos humanos (Rochedo; Wasserman, 2003; Portilho, 2005).

O solo age como um meio de migração para a transferência de radionuclídeos aos sistemas biológicos e, por isso, é o indicador básico de contaminação radiológica no ambiente (Al-Hamarneh; Awadallah, 2009). As concentrações desses radionuclídeos são relativas ao tipo de rocha de onde esses solos se formaram (UNSCEAR, 2008).

Existem vários estudos para determinar o *background* devido aos níveis de radionuclídeos nos solos. Diversas pesquisas que ocorreram em diferentes países já foram realizadas em ambientes *outdoors* com o objetivo de avaliar a radioatividade natural. Elas indicam que os três principais componentes da radiação gama externa são descendentes dos principais formadores da radiação natural, ^{238}U , ^{232}Th e ^{40}K (UNSCEAR, 2008).

2.5 Espectrometria Gama

A emissão de um raio gama ocorre quando um núcleo atômico instável decai por emissão de radiação alfa, beta ou por captura eletrônica, onde o núcleo resultante possui um excesso de energia devido ao fato de seus prótons e nêutrons não terem alcançado completamente uma configuração de equilíbrio. Para atingir um estado de equilíbrio este excesso de energia é liberado sob a forma de radiação eletromagnética (Ferreira, 2012). Cada fóton de raio gama emitido durante um decaimento radioativo é característico do nuclídeo que está se desintegrando e tem sua energia e intensidade conhecida, sendo possível identificar e quantificar os radionuclídeos emissores gama presentes em uma amostra por espectrometria gama (Rosa, 2012).

A espectrometria gama é uma técnica analítica não destrutiva que permite qualificar e quantificar radionuclídeos naturais e artificiais emissores de raios gama, fornecendo informações sobre vários emissores gama em uma única análise, apresentando a vantagem de um baixo custo na preparação das amostras e na maioria das análises não há a necessidade da separação química do radionuclídeo que será analisado (Ebaid; Khater, 2006; Cardoso, 2012). Esta técnica é utilizada para qualificação e quantificação de radionuclídeos em diversos tipos de amostras, tais como: amostras ambientais, amostras decorrentes da operação rotineira de

instalações radioativas e nucleares, amostras de alimentos, no escopo de programa de monitoração radiológica ambiental, entre outros (Santos Junior, 2009, Maduar, 2010).

A espectrometria gama pode ser utilizada na análise de emissores de radiação gama com energias que podem variar de 30 keV a 2000 keV, dependendo do equipamento, podendo haver interferências da radiação de fundo, auto absorção gama e efeitos secundários para baixas energias (Rosa *et al.*, 2013; Santos Junior, 2009). O tempo de análise depende da concentração do radionuclídeo de interesse na amostra. Outros métodos analíticos, como por exemplo, espectrometria alfa, cintilação líquida e espectrometria de massa, podem ser utilizadas em análises ambientais, porém com custos mais elevados e processos mais trabalhosos na preparação das amostras (Santos Junior, 2009).

O princípio básico da espectrometria gama consiste na coleta e medida de cargas elétricas produzidas pela interação da radiação gama sobre um cristal semiconductor por meio do efeito fotoelétrico, efeito Compton ou produção de pares, transferindo energia para o detector (Gishitomi, 2012; Máduar, 2010).

Todas estas interações transferem parcialmente ou completamente a energia do fóton para um elétron do meio. A energia do fóton incidente e a forma como ele interage com os elementos que constituem o material são fatores que afetam a transferência da energia do fóton para o elétron (Cardoso, 2012). Os efeitos produzidos pela interação da radiação gama com a matéria, têm como produto final a ionização dos átomos do material com o qual a radiação interage. As cargas geradas nesta interação são amplificadas, permitindo a leitura de um pulso de carga ou tensão, detectando a radiação.

3 METODOLOGIA

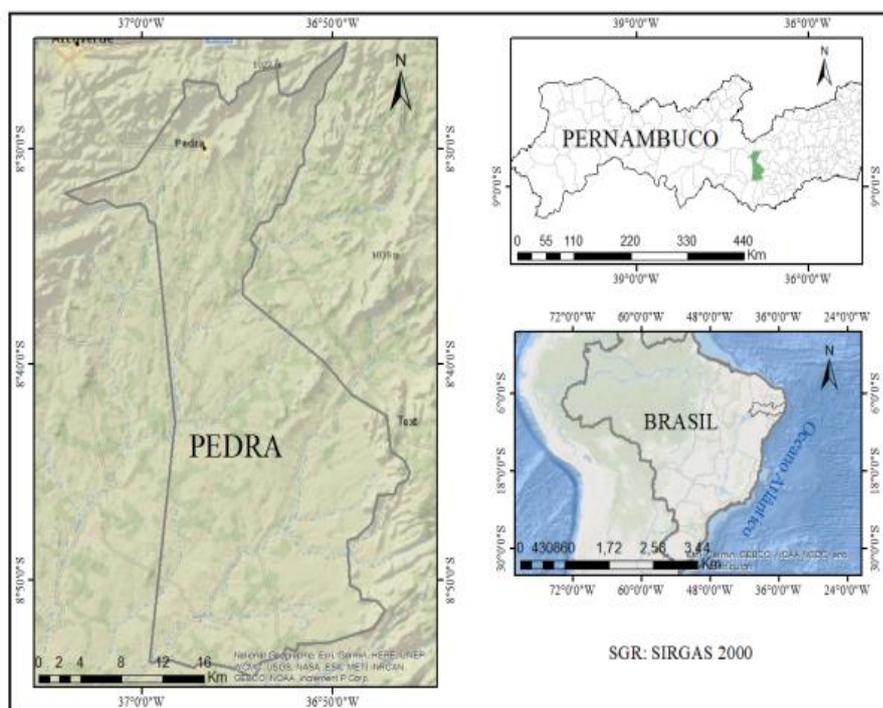
3.1 Seleção de Amostra

A amostra desse estudo corresponde à rocha coletada na pesquisa realizada por Araújo (2009), no município pernambucano de Pedra. O município de Pedra localiza-se na Mesorregião Agreste e na Microrregião Vale do Ipanema, no estado de Pernambuco, em torno da latitude de 08°29.817' sul, da longitude de 36°56.450' oeste e da altitude de 593m (Figura 3).

A área municipal ocupa 848,8 km² e representa 0,86% do estado. O município situa-se nos domínios da bacia hidrográfica do Rio Ipanema, contando com a água dos açudes Arcoverde, Mossoró, além das Lagoas do Bicheiro, do Jacu, da Grande, do Algodão e do Anzol. A temperatura média anual da região é de 22,9°C e apresenta uma vegetação do tipo caatinga hipoxerófila.

A amostra constou-se de rocha cálcio-silicática anfíbolítica e granítica que foi coletada em afloramento rochoso da área estudada. No Laboratório de Tecnologia Mineral (LTM) do Departamento de Engenharia de Minas da Universidade Federal de Pernambuco, a amostra passou por tratamento baseado em técnicas para trituração e redução de granulometria.

Figura 3 – Mapa do município de Pedra do estado de Pernambuco

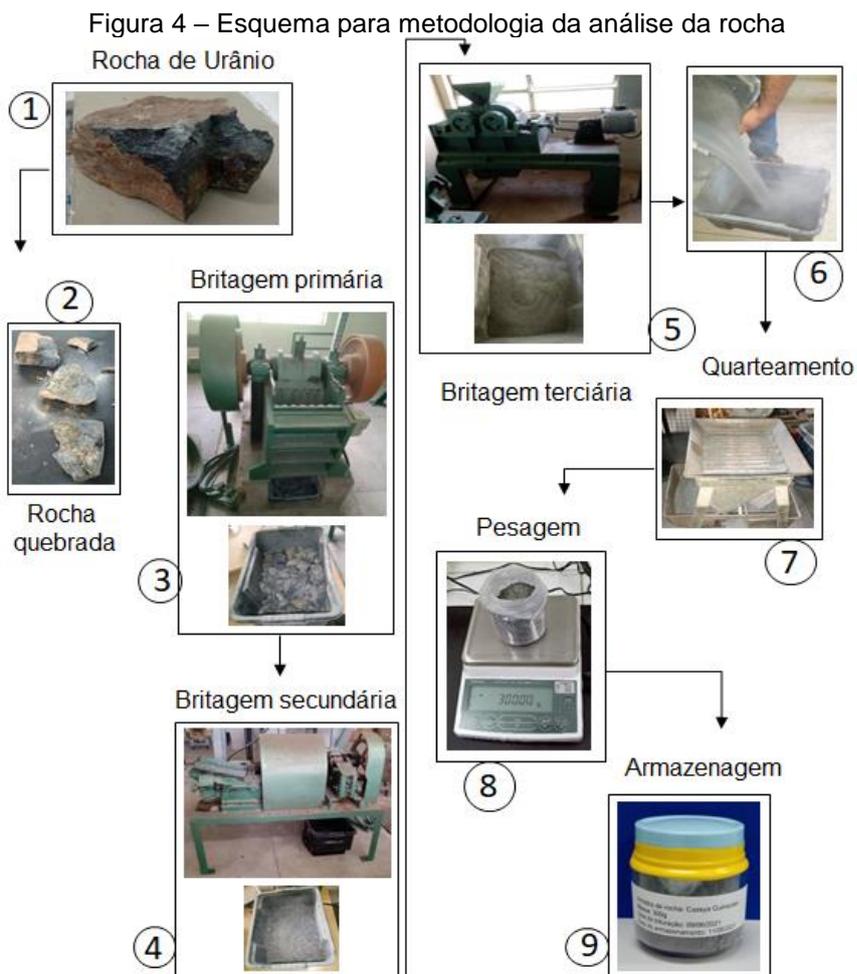


Fonte: Próprio autor (2022).

3.2 Tratamento de Amostra

O preparo da amostra foi realizado nas instalações do Laboratório de Tecnologia Mineral (LTM), do Departamento de Engenharia de Minas (DEMINAS) da UFPE. Uma massa de 30 kg teve a sua granulometria reduzida ($< 1,0$ mm), suficiente para a passagem na peneira 12# (Tyler). Para isso, foram adotados os procedimentos padrões do laboratório, utilizando britadores de mandíbulas e moinhos de rolos grandes e pequenos (Figura 4).

Após o tratamento, o material foi homogeneizado e quarteado. No Laboratório de Radioecologia e Controle Ambiental (LARCA) do DEN/UFPE foi realizada a pesagem de 300 g dessa amostra NORM, e posteriormente acondicionada em recipiente plástico hermeticamente lacrado, durante um período de 40 (quarenta) dias, tempo necessário para o estabelecimento do equilíbrio radioativo secular entre os radionuclídeos de meias-vidas curtas.



Fonte: Próprio autor (2022).

A amostra foi levada para o espectrômetro gama de alta resolução, onde foram realizadas a qualificação e quantificação dos radionuclídeos. A aquisição de dados, manipulação, armazenamento, exibição e análise dos espectros gama foi realizada pelo programa computacional Genie-2K[®] da Canberra[®] versão 3.0.

3.3 Calibração do Espectrômetro Gama para Caracterização NORM

Para a calibração em energia do sistema de medidas, foi adotado um arranjo experimental com a utilização de fontes padrões pontuais e seladas de Bário (¹³³Ba), Césio (¹³⁷Cs) e Cobalto (⁶⁰Co), certificadas pelo Instituto de Radioproteção e Dosimetria (IRD) - Rio de Janeiro e pela IAEA, pertencentes ao LMRI do DEN da UFPE. As informações das fontes são apresentadas na Tabela 2.

Tabela 2 - Dados referentes às fontes pontuais

Padrão	T_{1/2} (a)	Energia (keV)	γ (%)	A (μCi)	Data
¹³³ Ba	10,51	81,00	34,11	1,00	jun/98
		356,02	61,94		
¹³⁷ Cs	30,20	661,66	85,1	5,00	jun/98
⁶⁰ Co	5,27	1.173,24	99,86	1,00	jun/98
		1.332,50	99,98		

Fonte: TECDOC-619 - IAEA (1991).

a: ano; T_{1/2}: meia-vida física; γ: probabilidade percentual de emissão; A: atividade.

A escolha desses padrões se deu pelo intervalo de emissões gama, de 81,0 a 1.332,5 keV, que corresponde à faixa de energia necessária para análise dos radionuclídeos de interesse na matriz ambiental.

As fontes foram posicionadas na superfície do detector, sem interposição de barreiras e com tempo morto ajustado, sendo medidas individualmente por um período de 300 segundos, tempo considerado necessário para a obtenção de uma boa estatística de contagem, em congruência com a atividade de cada padrão. Após as aquisições, foram ajustados os canais, usando os recursos do software Genie-2k[®] da Canberra[®], com base no documento técnico da Agência Internacional de Energia Atômica TECDOC-619 (IAEA, 1991).

3.4 Eficiência em Energia para Espectrometria Gama

Um dos principais procedimentos para caracterização de emissores gama por espectrometria gama é a construção da curva de eficiência em energia. Para o procedimento foram utilizados padrões de Bário (¹³³Ba), Európio (¹⁵²Eu) e Amerício (²⁴¹Am), cujas atividades iniciais foram certificadas pelo IRD - Rio de Janeiro, e que apresentam energia bem definidas.

Cada padrão foi preparado e armazenado em recipiente de polietileno do mesmo tipo daqueles utilizados para as análises das amostras do estudo, contendo 250 g de solo dopado com os referidos padrões, cujos recipientes foram posteriormente lacrados. As análises radiométricas foram realizadas no LABRAN (Laboratório de Radioquímica e Análise Nuclear), fazendo uso de um espectrômetro com detector do tipo Germânico Hiperpuro com a janela de Berílio (HPGe-Be), nas mesmas condições da análise da amostra NORM (matriz ambiental).

Após as aquisições e análises dos espectros gama, foram calculadas as eficiências em energia, fazendo uso da Equação 1 (IAEA, 1991). Na Tabela 3 são apresentadas as especificações das fontes utilizadas nesse procedimento operacional.

$$\varepsilon = \frac{N_{Ei}}{A.m.\gamma.t} \quad (1)$$

Nessa equação, ε representa a eficiência para a energia gama do padrão; A corresponde à atividade específica gama do isótopo do padrão corrigida (Bq.kg^{-1}); N_{Ei} é a área líquida do fotopico determinada experimentalmente em contagens; m é a massa da amostra (kg); γ , a probabilidade de emissão de radiação gama para determinada energia; t é o tempo de contagem (s).

Para os cálculos das atividades específicas do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , bem como, das eficiências de contagens dos radionuclídeos em estudo, a construção da curva de eficiência foi o ponto determinante.

Tabela 3 - Dados utilizados para a elaboração de curva de eficiência

Emissor	Energia (keV)	γ (%)	ε
^{241}Am	59,54	36,00	0,00487
^{133}Ba	81,00	34,11	0,00590
	276,40	7,15	0,00380
	302,85	18,30	0,00352
	356,02	61,94	0,00305
	383,85	8,91	0,00283
	^{152}Eu	121,78	28,37
244,70		7,53	0,00420
344,28		26,57	0,00316
443,97		3,13	0,00243
867,39		4,21	0,00145
964,06		14,63	0,00147
1.085,84		10,13	0,00145
	1.212,97	1,41	0,00126

Fonte: TECDOC-619 - IAEA (1991).

γ : probabilidade de emissão; ε : eficiência.

3.5 Caracterização de NORM

As atividades específicas da amostra NORM e suas respectivas incertezas foram determinadas por meio da área líquida de cada transição gama. Para determinação do ^{238}U foi utilizada a transição de 63,29 keV, o ^{40}K foi analisado com o seu fotopico de 1.460,86 keV, o ^{226}Ra , pelas energias de 351,92 e 609,31 keV e, no ^{232}Th , para as transições de 583,19 e 911,21 keV.

As atividades dos radionuclídeos naturais foram calculadas pela aplicação da Equação 2 (IAEA, 1989 apud Garcêz, 2016).

$$A = \frac{N_{Ei}}{\varepsilon.I.\gamma.t.m} \quad (2)$$

Nesta equação, A representa a concentração de atividade (Bq.kg^{-1}); N_{Ei} corresponde a área total líquida da transição gama de interesse (contagens); ε representa a eficiência de contagem, considerando a energia específica; t é o tempo

de contagem em segundos (s); I_γ é a abundância gama do radionuclídeo em questão; e m é a massa da amostra em quilograma (kg).

Após a determinação do *background*, foi utilizado o módulo *Gamma Acquisition & Analysis* do Genie-2K[®], para calcular a área líquida de cada região de interesse, conforme detalhado na Equação 3.

$$N_{Ei} = \int_{a=u}^V X_a - N_{BG} \quad (3)$$

Onde o X_a representa o somatório das contagens da área total líquida da transição gama de interesse e N_{BG} é o valor do *background*.

Para o ²²⁶Ra e ²³²Th, o cálculo de suas atividades específicas finais foram determinados mediante o emprego da Equação 4, onde foi onde foi considerada a média ponderada em função das transições gama características de cada radionuclídeo e suas respectivas probabilidades de emissão.

$$\underline{A} = \frac{A_1 \cdot \gamma_1 + A_2 \cdot \gamma_2}{\gamma_1 + \gamma_2} \quad (4)$$

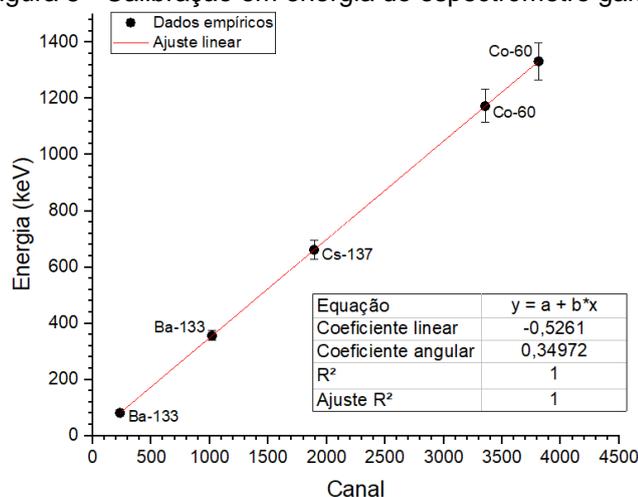
Onde A_1 e A_2 correspondem às atividades específicas calculadas; γ_1 e γ_2 são as probabilidades de emissões para cada transição gama. Através da Equação 1, para as diferentes transições gama.

O tempo de análise da amostra foi de 84.600 segundos, a qual foi posicionada a 8 cm do detector HPGe, com a temperatura ambiente padronizada em aproximadamente 23°C, umidade relativa do ar em cerca de 52%. A fim de minimizar a incerteza da medida, o *background* do recipiente foi medido com os mesmos parâmetros.

4 RESULTADOS E ANÁLISES

Para a caracterização dos radionuclídeos presentes na amostra de rocha, foi realizada a calibração do sistema de medidas HPGe, como mostrado na Figura 5.

Figura 5 - Calibração em energia do espectrômetro gama



Fonte: A autora (2022).

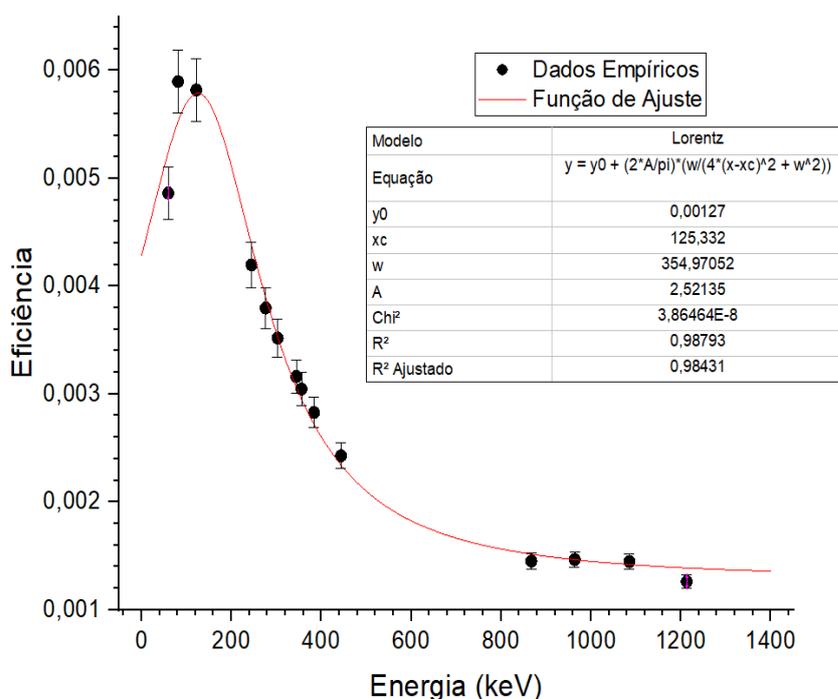
A correlação linear entre os dados empíricos e o modelo de ajuste foi excelente, com R^2 igual a 1, o que confere condição para qualificação dos radionuclídeos. A partir do modelo linear, foi estabelecida a Equação 5, que permitiu caracterizar os radionuclídeos pelas transições gama.

$$E = 0,35 * C - 0,53 \quad (5)$$

Sendo E a energia a ser determinada, dada em (keV) e C o canal de cada fotopico.

O modelo de eficiência em energia foi estabelecido pela Figura 6, usando uma faixa de energia que abrange o intervalo utilizado para quantificação dos radionuclídeos naturais. O melhor ajuste obtido foi para a função Lorentz, demonstrando que a eficiência em energia tende a diminuir com o aumento da energia, até um platô de 1.200 keV.

Figura 6 - Modelo de eficiência da espectrometria gama



Fonte: A autora (2022).

Utilizando os parâmetros experimentais obtidos no ajuste do modelo da Figura 6, foi determinada a Equação 6, que permitiu obter as eficiências ajustadas para as transições gama de interesse.

$$\varepsilon = y_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{w}{4(E-xc)^2 + w^2} \quad (6)$$

Nesta equação, ε representa a eficiência em energia; E a energia associada ao fóton; y_0 , A , w e xc que foram os parâmetros de ajustes da equação, os quais são apresentados no quadro da curva de eficiência (Figura 6).

Na Tabela 4, estão apresentados os resultados em atividade dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , e ^{40}K , na amostra NORM.

Tabela 4 - Resultado da amostra do presente estudo

Radionuclídeos	A (kBq)
^{238}U	682,21
^{226}Ra	1.070,05
^{232}Th	4,12
^{40}K	3,89

Fonte: A autora (2022).

A: Atividade.

Os valores das atividades para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K foram superiores às médias globais relatadas pela UNSCEAR (2008), onde os valores foram de 33 Bq.kg⁻¹; 370 Bq.kg⁻¹; 45 Bq.kg⁻¹ e 420 Bq.kg⁻¹, para ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K , respectivamente. Esse alto valor é devido ao fato da amostra NORM ter sido extraída de uma área uranífera de ocorrência anômala de NORM.

4.1 Resultados Consolidados do Estudo

Os valores referenciados para representação das atividades dos radionuclídeos naturais ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th , e ^{40}K , foram de 682,21 kBq, 1070,05 kBq, 4,12 kBq e 3,89 kBq, respectivamente. Esses resultados representam uma situação real de campo que sofre influência de muitas variáveis, algumas sem controle do observador. Contudo, possibilitou a investigação de fatores a serem considerados excelentes em uma avaliação de campo e de alto *background* os quais podem influenciar na dosimetria do ambiente.

Fazendo uma comparação com alguns estudos em áreas influenciadas por NORM, com destaque para a pesquisa realizada por Santos Júnior (2009) onde foram evidenciadas anomalias radioativas em rochas e solos no município de Pedra - Pernambuco. Os resultados obtidos para o rádio equivalente, de 16.979 a 147.159 Bq.kg⁻¹, caracterizaram uma condição anômala inferior ao que foi simulado no presente estudo, fato que permitiu avaliação de radioatividade ambiental em situação anômala.

O estudo em áreas de ocorrência uraníferas habitadas realizado por Ramos (2020), nos municípios de Abreu e Lima, Paulista e Olinda no estado de Pernambuco, apresentaram uma média de concentração de ^{222}Rn por detecção passiva de 4.798 ± 461 Bq.m⁻³ e de 5.012 ± 589 Bq.m⁻³, quando do uso de monitoração ativa em residências, para um tempo de monitoração de 3 a 6 meses, o que evidenciou uma condição anômala superior ao presente estudo, onde se destaca a importância de investigação em áreas impactadas por NORM.

No estudo realizado por Oliveira (2021), foram realizadas medidas da concentração de radônio em rochas próximas às habitações, com valores entre $53,7 \pm 1,6$ Bq.m⁻³ a 1.141 ± 26 Bq.m⁻³, mostrando que a contribuição desse material quando utilizado como elemento decorativo ou em materiais de construção pode ocasionar exposição ao radônio e progênie, conseqüentemente, problemas de saúde pública.

As análises comparativas corroboram com os resultados deste estudo, comprovando que os valores encontrados para a concentração e atividades desses

radionuclídeos naturais estão influenciados pela amostra NORM, onde o material rochoso possui altos teores dos radionuclídeos da série do ^{238}U .

5 CONSIDERAÇÕES FINAIS

A análise dos espectros gama permite a identificação qualitativa dos radionuclídeos presentes nas amostras de rochas e de solo como sendo das séries do ^{238}U , do ^{232}Th e o ^{40}K .

A rocha cálcio-silicática anfibolítica apresentou as maiores concentrações específicas de ^{238}U , ^{226}Ra e ^{232}Th e ^{40}K . O ^{238}U apresentou-se concentrado ao redor da rocha cálcio-silicática anfibolítica, enquanto que o ^{232}Th e o ^{40}K estão distribuídos ao longo de toda área.

Na área do município de Pedra possui anomalia natural de urânio e tório que ultrapassam os limites recomendados para indivíduos do público. Devem ser tomadas medidas reguladoras e preventivas, tais como: isolar os afloramentos, de forma que não desenvolvam atividades agrícolas ou moradias próximas a essas localidades, com a finalidade de proteger os residentes dessas áreas contra os possíveis efeitos causados pela exposição externa à radiação gama natural de forma direta ou pela transferência via cadeia alimentar.

Recomenda-se uma avaliação citogenética dos indivíduos residentes próximos a essas áreas, com o objetivo de realizar um estudo mais completo sobre os efeitos da radiação ionizante nesses indivíduos.

Os estudos radiométricos associados aos estudos geoquímicos do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K servirão de base para construção de um banco de dados eficiente na avaliação dos níveis de radioatividade natural a nível mundial.

6 REFERÊNCIAS

- CARDOSO, G. V.; AMARAL SOBRINHO, N. M. B.; WASSERMAN, M. A. V.; MAZUR, N. **Geoquímica de Radionuclídeos Naturais em Solos de Áreas Circunvizinhas a uma Unidade de Mineração e Atividade de Urânio**. R. Bras. Ci. Solo, v. 33, p. 1909-1917, 2009.
- EISENBUD, M.; GESELL, T. Environmental Radioactivity from natural, industrial and military sources. 4 ed. California, USA: **Academic Press**, 1997.
- IAEA, International Atomic Energy Agency. **Handbook of parameter values for the prediction of radionuclide transfer in terrestrial and freshwater environments**. Tech Rep Series No.472, Vienna. 2010.
- IAEA, International Atomic Energy Agency. X ray and gamma-ray standards for detector calibration. IAEA publication, technical report: **TECDOC 619**, INSS 1011-4289, Vienna, 1991. 157p.
- IAEA, International Atomic Energy Agency (IAEA). Measurements of radionuclides in food and the environ, **Technical Reports Series 295**, Vienna, 1989.
- ICRP, International Commission on Radiological Protection. ICRP 65 - Protection Against Radon-222 at Home and at Work. **Oxford**: Pergamon Press, v. 23, n. 2, 1993.
- ICRP, International Commission on Radiological Protection. **Radiation Protection of Workers in Mines**. Annals of ICRP Publication, 47, Canada, United States, 1986.

- IAEA, International Atomic Energy Agency. **Radiation Protection and Safety of Radiation Sources: International Basic Safety Standards, General Safety Requirements**, no GSR Part 3, International Atomic Energy Agency, Vienna. 2021.
- INSTITUTO NACIONAL DE CÂNCER JOSÉ ALENCAR GOMES DA SILVA. **Ambiente, trabalho e câncer: aspectos epidemiológicos, toxicológicos e regulatórios**. Instituto Nacional de Câncer José Alencar Gomes da Silva. – Rio de Janeiro: INCA, 2021.
- WORLD HEALTH ORGANIZATION. Fact sheets. **Radon and health**. Geneva: WHO, 2016.
- MAZZILLI, B. P.; MÁDUAR, M. F.; CAMPOS, M. P. **Radioatividade no Meio Ambiente e Avaliação de Impacto Radiológico Ambiental**. Documento TNA 5754. São Paulo: Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares, Universidade de São Paulo, 2011, 92 p.
- MAGALHÃES, C. A. P. **Projeto Venturosa: Estudos Geológicos e Radiométricos na Folha Venturosa - Área I, Sub-Área F**. 1977. 49 p. Relatório de Conclusão de Curso (Graduação em Geologia) - Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 1977.
- PARAGUASSÚ, A.B.; RODRIGUES, J.E.; RIBEIRO, R.P., FRAZÃO, E.B. **Indústria da pedra: da extração à aplicação final**. 2ª ed. São Carlos: EESC-USP, 2017. 143p.
- SANTOS JÚNIOR, J. A. **Avaliação radiométrica do ^{238}U , ^{226}Ra , ^{232}Th e ^{40}K em uma área anômala do Agreste de Pernambuco**. 2009, 139 p. Tese (Doutorado em Tecnologias Energéticas e Nucleares), Universidade Federal de Pernambuco, Recife, 2009.
- TZORTZIS, M., TSERTOS, H., CHRISTOFIDES, S., & CHRISTODOULIDES, G. Gammaray measurements of naturally occurring radioactive samples from Cyprus characteristic geological rocks. **Radiation Measurements**, v. 37, p. 221 – 229, 2003.
- UNEP, United Nations Environment Programme. **Radiação, efeitos e fontes**. Disponível em: <http://www.aben.com.br/Arquivos/544/544.pdf>. Acessado em: 15 jul. 2021.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **Sources and effects of ionizing radiation**, anexo I, 2000. UNSCEAR Report to the United Nations General Assembly.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Report: V. I: **Sources** – Report to the General Assembly Scientific Annexes a and B. United Nations, United Nations Office, Vienna, 2008. ISBN: 13: 9789211422740.
- UNSCEAR, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. **Sources and effects of ionizing radiation**, United Nations Publication, New York, v. 1, p. 222-463, 2010.
- VEIGA, R.; SANCHES, N.; ANJOS, R. M.; MACARIO, K.; BASTOS, J.; IGUATEMY, M.; AGUIAR, J. G.; SANTOS, A. M. A.; MOSQUERA, B.; CARVALHO, C.; BAPTISTA FILHO, M.; UMISEDIO, N. K. **Measurement of natural radioactivity in Brazilian beach sands**. *Radiation Measurements*, p. 189-196, 2006.
- WASSERMAN, M.A.; LAURIA, D.C. **Contribuição do aporte atmosférico na atividade de radionuclídeos naturais numa região rica em Monazita**. In: ENCONTRO NACIONAL DE APLICAÇÕES NUCLEARES, 5. Rio de Janeiro, 2002. Anais. Rio de Janeiro, p. 21-25.